

SÉRIE A, N° 3044
N° D'ORDRE :
3916

THÈSES

PRÉSENTÉES

A LA FACULTÉ DES SCIENCES
DE L'UNIVERSITÉ DE PARIS

POUR OBTENIR

LE GRADE DE DOCTEUR ÈS SCIENCES PHYSIQUES

PAR

SIMONE VUCCINO

1^{re} THÈSE. — MESURES ABSOLUES D'ACTIVITÉ β . APPLICATION A LA
DÉTERMINATION DU MILLIGRAMME Ra ÉQUIVALENT.

2^e THÈSE. — PROPOSITIONS DONNÉES PAR LA FACULTÉ.

Soutenues le 22 juin 1957 devant la Commission d'examen.

MM. DE BROGLIE..... *Président.*

MORAND..... } *Examineurs.*
JOLIOT-CURIE ... }

PARIS

MASSON ET C^{ie}, ÉDITEURS

LIBRAIRES DE L'ACADÉMIE DE MÉDECINE

120, BOULEVARD SAINT-GERMAIN

1959

SÉRIE A, N° 3044

N° D'ORDRE :

3916

THÈSES

PRÉSENTÉES

A LA FACULTÉ DES SCIENCES
DE L'UNIVERSITÉ DE PARIS

POUR OBTENIR

LE GRADE DE DOCTEUR ÈS SCIENCES PHYSIQUES

PAR

SIMONE VUCCINO

1^{re} THÈSE. — MESURES ABSOLUES D'ACTIVITÉ β . APPLICATION A LA
DÉTERMINATION DU MILLIGRAMME Ra ÉQUIVALENT.

2^e THÈSE. — PROPOSITIONS DONNÉES PAR LA FACULTÉ.

Soutenues le 22 juin 1957 devant la Commission d'examen.

MM. DE BROGLIE..... *Président.*

MORAND..... } *Examineurs.*
JOLIOT-CURIE ... }

PARIS

MASSON ET C^{ie}, ÉDITEURS

LIBRAIRES DE L'ACADÉMIE DE MÉDECINE

120, BOULEVARD SAINT-GERMAIN

1959



FACULTÉ DES SCIENCES DE L'UNIVERSITÉ DE PARIS

Doyen J. PÉRÈS

PROFESSEURS

G. JULIA	T	Analyse supérieure et Algèbre supérieure.	JANET	T	Mécanique analytique et Mécanique céleste.
E. DARMOIS	T	Enseignement de Physique.	PETIT	T	Biologie maritime.
FOCH	T	Mécanique physique et expérimentale.	QUENEY	T	Météorologie et dynamique atmosphérique.
PAUTHENIER	T	Electrotechnique générale	GALLIEN	T	Embryologie.
DE BROGLIE	T	Théories physiques.	EICHORN	T	Biologie végétale (P.C.B.)
JOB	T	Chimie générale.	DE CUGNAC	T	Biologie végétale (P.C.B.)
PRENANT	T	Anatomie et Histologie comparées.	M ^{lle} CAUCHOIS	T	Chimie physique.
GARNIER	T	Géométrie supérieure.	THELLIER	T	Physique du Globe.
PÉRÈS	T	Mécanique des fluides et applications.	AUDUBERT	T	Electrochimie.
LAUGIER	T	Physiologie générale.	L'HÉRITIER	T	Génétique.
M. CURIE	T	Physique (P.C.B.).	GRIVET	T	Radioélectricité.
BARRABÉ	T	Géologie structurale et Géologie appliquée.	PONCIN	T	Mécanique des fluides.
G. DARMOIS	T	Calcul des probabilités et Physique mathématique.	THIRY	T	Mécanique appliquée.
J. BOURCART	T	Géographie physique et Géologie dynamique.	DUBREIL	T	Arithmétique et théorie des nombres.
PLANTEFOL	T	Botanique.	QUELET	T	Chimie organique.
GRASSÉ	T	Évolution des êtres organisés.	CAGNIARD	T	Géophysique appliquée.
PRÉVOST	T	Chimie organique.	CHAMPETIER	T	Chimie macromoléculaire.
BOULIGAND	T	Application de l'analyse à la Géométrie.	CUVILLIER	T	Géologie structurale et Géologie appliquée.
CHAUDRON	T	Chimie appliquée.	JUNG	T	Pétrographie.
WYART	T	Minéralogie.	TRILLAT	T	Microscopie et diffraction électronique.
TEISSIER	T	Zoologie.	WIEMANN	T	Chimie organ. structurale.
MANGENOT	T	Biologie végétale.	JACQUINOT	T	Spectroscopie et Physique céleste.
P. AUGER	T	Physique quantique et Relativité.	VASSY	T	Théories physiques.
MONNIER	T	Physiologie des fonctions.	DESTOUCHES	T	Géologie.
PIVETEAU	T	Géologie.	M. PRUVOST	T	Chimie (P.C.B.).
ROCARD	T	Physique (E.N.S.).	AMIEL	T	Minéralogie.
H. CARTAN	T	Mathématiques (E.N.S.).	HOCART	T	Physique (P.C.B.).
LAFFITTE	T	Chimie générale.	J.-P. MATHIEU	T	Biologie animale (P.C.B.)
FAVARD	T	Mécanique générale.	COUTEAUX	T	Biologie animale (P.C.B.)
COULOMB	T	Physique du Globe.	MAY	T	Calcul diff. et intégral.
M ^{lle} COUSIN	T	Biologie animale (P.C.B.)	CHOQUET	T	Biologie (P.C.B.).
CHRÉTIEN	T	Chimie minérale.	FELDMANN	T	Physique (P.C.B.).
P. DRACH	T	Zoologie.	GUINIER	T	Biologie (P.C.B.).
KASTLER	T	Physique.	JOST	T	Calcul des probabilités.
EPHRUSSI	T	Génétique.	FORTET	T	Méthodes mathématiques de la Physique.
WURMSER	T	Biol. physico-chimique.	SCHWARTZ	T	Physiologie végétale.
RIVIÈRE	T	Géologie (S.P.C.N.).	CHOUARD	T	Aviation.
GAUTHERET	T	Biologie végétale (P.C.B.)	MALAVARD	T	Calcul différentiel.
LUCAS	T	Recherches physiques.	BRELOT	T	Chimie (P.C.B.).
A. THOMAS	T	Biologie cellulaire.	NORMANT	T	Chimie (P.C.B.).
ARNULF	T	Optique appliquée.	BÉNARD	T	Botanique (E.N.S.).
MAX MORAND	T	Physique.	BUVAT	T	Statistiques mathématiques.
SOLEILLET	T	Physique.	DUGUÉ	T	Chimie (S.P.C.N.).
FORTIER	T	Mécanique expérimentale des fluides.	GELOSO	T	Psychophysiologie.
DANJON	T	Astronomie.	SOULAIRAC	T	Physiologie végétale.
FROMAGEOT	T	Chimie biologique.	ULRICH	T	Optique théorique et appliquée.
LAPORTE	T	Physique générale et Radioactivité.	MARÉCHAL	T	Théories chimiques.
			KIRRMANN	T	Botanique.
			CHADEFAUD		

DESTRIAU		Physique (M.P.C.).	DIXMIER		Mathématiques (M.P.C.)
M ^{lle} LE BRETON ..		Physiologie générale.	SOUGHAY		Chimie (P.C.B.).
SALEM	T	Mathématiques générales.	AIGRAIN		Physique (P.C.B.).
LELONG	T	Mathématiques générales.	BRUSSET		Chimie (P.C.B.).
DEVILLERS		Anatomie et Histologie comparées.	M. LEVY		Physique théorique.
			LENORMANT		Physiologie.
EHRESMANN	T	Topologie algébrique.	M ^{me} CHAIX		Chimie biologique.
FRANÇON		Physique (M.P.C.).	M ^{me} HUREL-PY ...		Biologie végétale (P.C.B.).
GLANGEAUD	T	Géographie physique et Géologie dynamique.	PIAUX		Chimie (P.C.B.).
			BRUN		Mécanique expérimentale des fluides.
GODEMENT	T	Mathématiques (M.P.C.).			Chimie biologique.
PISOT	T	Calcul des probabilités.	LEDERER		
E. ROCH		Géologie.	M ^{me} DUBREIL-JACO-		
SCHATZMANN		Astrophysique	TIN		Mathématiques.
TERMIER	T	Paléontologie stratigraphique.	M ^{me} LELONG - FER-		
			RAND		Mathématiques (E.N.S.).
ZAMANSKY	T	Mathém. générales.	BELLAIR		Géologie (S.P.C.N.).
JOLIOT	T	Physique nucléaire et radioactivité.	COTTE	T	Physique (M.P.C.).
			J. DUBOIS		Chimie.
LENNUIER		Physique (P.C.B.).	LAMOTTE		Zoologie (E.N.S.).
RIZET		Génétique.	LE ROLLAND		Mécanique des fluides.
M ^{me} TONNELAT		Théories physiques.	MICHEL		Chimie (P.C.B.).

Secrétaire Général Ch. MONIER

A MADAME IRÈNE JOLIOT-CURIE

Ces travaux ont été effectués au Laboratoire Curie de l'Institut du Radium, sous la direction de Mme Irène Joliot-Curie.

Je dédie à sa mémoire ce travail en exprimant ici toute ma respectueuse gratitude pour avoir bien voulu m'accueillir dans son laboratoire.

Mme Irène Joliot-Curie m'a guidée personnellement avec beaucoup de bienveillance pendant les années de recherches qui ont abouti à ce mémoire de thèse.

Je remercie M. le Professeur F. Joliot de m'avoir guidée et conseillée pour la rédaction de ce mémoire.

Je dois à l'amabilité du personnel du Laboratoire Curie, chercheurs, techniciens ou personnel administratif, d'avoir pu travailler dans une atmosphère de parfaite camaraderie et de collaboration scientifique, qui est de tradition dans ce laboratoire.

Le Centre National de la Recherche Scientifique m'a aidée matériellement, je lui exprime toute ma reconnaissance.

Je remercie MM. R. Grégoire et P. Savel pour toute leur sollicitude.

Mes remerciements vont également au Service des Mesures du C. E. A., sous la direction de M. Grinberg, ainsi qu'au Service des Constructions Electriques que dirige M. Surdin, pour m'avoir soit accueillie en stage dans leurs laboratoires, soit prêté gracieusement du matériel.



Digitized by the Internet Archive
in 2026

MESURES ABSOLUES D'ACTIVITÉ β . APPLICATION A LA DÉTERMINATION DU MILLIGRAMME Ra ÉQUIVALENT

Par SIMONE VUCCINO

PLAN GÉNÉRAL

INTRODUCTION.

CHAPITRE PREMIER. — *Considérations générales sur la méthode des coïncidences, appliquée à la mesure des activités.*

- A) Historique de la méthode.
- B) Principe de la méthode.

CHAPITRE II. — *Les installations : caractéristiques et fonctionnement.*

- A) Installation pour la mesure de sources de faible intensité radioactive.
- B) Installation pour la mesure de sources intenses (supérieures à 10 microcuries).
- C) Installation pour mesure absolue par effet d'ionisation.

CHAPITRE III. — *Les mesures absolues : conditions expérimentales, marche des expériences et résultats.*

- A) La préparation des échantillons à étalonner.
- B) Les mesures par la méthode des coïncidences $\beta - \gamma$.
- C) Les mesures par la méthode des coïncidences $\gamma - \gamma$.
- D) Causes d'erreurs.
 - 1) Les corrélations angulaires.
 - 2) Les coïncidences fortuites.

(¹) Thèse présentée à la Faculté des Sciences de l'Université de Paris pour obtenir le grade de Docteur ès Sciences physiques et soutenue le 22 juin 1957 devant la Commission d'examen.

Annales de Physique, 1959.

- 3) La diffusion en arrière des électrons mous.
- 4) Le mouvement propre.
- 5) Les erreurs statistiques.
- 6) L'efficacité du compteur β envers les rayons γ .

E) Résultats des mesures absolues.

- 1) Comparaison entre nos résultats et ceux d'autres auteurs.
- 2) Comparaison entre les résultats obtenus par différentes méthodes.

CHAPITRE IV. — *Détermination du milligramme Ra équivalent de plusieurs radioéléments émetteurs γ .*

- A) Objet.
- B) Description des chambres condensateurs.
- C) Le milligramme Ra équivalent.
- D) Rendement des chambres d'ionisation.

CHAPITRE V. — *Conclusion.*

BIBLIOGRAPHIE.

INTRODUCTION

De nombreux problèmes de physique nucléaire, ainsi que les applications pratiques des radioéléments, nécessitent la connaissance du nombre absolu de désintégrations par unité de temps, subies par les atomes d'une source radioactive.

La connaissance de l'activité A_t à l'instant t et de la probabilité de désintégration par unité de temps (constante radioactive) permet de calculer le nombre n_t d'atomes radioactifs présents à l'instant t par la relation bien connue : $A_t = \frac{dn_t}{dt} = \lambda n_t$.

Réciproquement, on peut, connaissant λ et la masse atomique du radioélément, mesurer n_t par une pesée pour calculer A_t ; mais ce procédé n'est possible que pour des radioéléments de période longue et dont on dispose en quantité pondérable.

Le radium parmi les radioéléments à période longue se prête particulièrement bien à ce genre de détermination, et il a été choisi avec raison comme étalon de radioactivité.

1 g de radium subit $3,7 \times 10^{10}$ désintégrations par seconde à mieux de 1 p. 100 près. Le curie est la quantité d'un radioélément dont $3,7 \times 10^{10}$ d'atomes se désintègrent par seconde. C'est cette unité ou plutôt un sous-multiple, le microcurie, que nous choisirons comme unité.

La mesure de quantités de radium contenues dans des tubes scellés et contenant les dérivés, s'effectue par comparaison dans les mêmes conditions des effets des rayonnements émis, à ceux de la source de l'étalon. On compare en général les effets d'ionisation produits par les rayons γ émis dans des grandes chambres d'ionisation. Ces comparaisons peuvent être effectuées à 1 p. 1 000 près en prenant beaucoup de précautions.

S'il est assez aisé de mesurer en valeur absolue le nombre de désintégrations α par unité de temps, il n'en est pas de même pour les désintégrations β . Le dénombrement absolu et même relatif des rayons β est difficile en raison, d'une part, du caractère continu du spectre d'énergie des β s'étalant de zéro à une valeur maximum, et d'autre part en raison de la forte diffusion que ces rayons subissent le long de leur parcours dans la matière.

Des difficultés analogues se rencontrent pour la mesure absolue du nombre de désintégrations par capture électronique et celle du nombre des transitions isomériques s'effectuant par émission de photons et d'électrons de conversions internes.

Les sections efficaces des rayonnements provoquant des réactions nucléaires, avec formations de radioéléments négatogènes ou positogènes sont le plus souvent déterminées par la mesure de l'activité absolue du radioélément formé. Réciproquement celle-ci jointe à la connaissance de la section efficace, permet de déterminer le flux du rayonnement transmutant ou la densité, si l'on connaît la vitesse des particules. C'est ainsi par exemple que l'on mesure couramment les densités neutroniques. On conçoit, par ces quelques exemples, l'intérêt de l'étude des meilleures méthodes pour mesurer les activités β .

Les méthodes d'étalonnage. — A) LORSQU'ON CONNAÎT L'ÉNERGIE DE DÉSINTÉGRATION PAR ATOME, il est possible, soit par microcalorimétrie, soit par effet d'ionisation dans un gaz, de mesurer l'énergie totale libérée dans un temps donné par la source et d'en déduire le nombre de désintégrations par unité de temps. Mais aussi, faut-il tenir compte de beaucoup de facteurs qui rendent ces mesures délicates lorsqu'on désire atteindre une précision d'environ 1 p. 100. Il faut connaître avec le plus de précision possible, la forme du spectre d'énergie β , sa limite supérieure pour calculer l'énergie moyenne emportée par ces rayons. En outre, des rayons γ accompagnent souvent ces désintégrations (spectres complexes) et il faut connaître la fraction de leur énergie absorbée dans le calorimètre, ou dans le gaz de la chambre d'ionisation. Comme nous l'avons déjà signalé, les effets de diffusion des rayons dans les parois des chambres d'ionisation, joints aux absorptions dans la matière de la source ou de son support, des rayons de très faible énergie du spectre, sont difficiles à calculer avec précision (2), (3), (17), (72), (76), (86).

B) ON PEUT D'AUTRE PART ET C'EST LA MÉTHODE LA PLUS UTILISÉE, dénombrer les particules émises par unité de temps, en employant un détecteur convenable, compteur Geiger-Müller, compteur à scintillations ou autre détecteur capable de déceler l'arrivée de chaque rayon.

a) *Méthode de l'angle défini.* — Des corrections difficiles à calculer, de même nature que celles qui ont été envisagées plus haut, notamment celles dues aux effets de diffusion et d'absorption, d'autant plus fortes que l'énergie est plus faible, diminuent la précision de cette méthode; il en est de même lorsqu'on compare l'activité d'échantillons de radio-éléments de nature différente, cette méthode a été perfectionnée par l'emploi de détecteurs comptant dans l'angle 4π les rayons β ; elle est dite méthode du « compteur 4π », nous en dirons quelques mots.

b) *Compteur 4π .* — La source de rayonnement est placée à l'intérieur du compteur, ce qui demande des manipulations préalables pouvant durer une vingtaine de minutes, sinon plus.

Ceci limite la méthode à la mesure d'échantillons dont la période est au moins supérieure à environ 10 m. La réalisation et la mise au point d'un compteur à angle 4π sont aussi très délicates. Par contre, la précision de la méthode est généralement indépendante du schéma de désintégration, ce qui permet de l'utiliser pour l'étalonnage d'un grand nombre d'émetteurs β .

La précision de la méthode est de quelques pour-cent, plusieurs causes d'erreurs étant à considérer :

1) L'erreur principale peut provenir de l'absorption du rayonnement dans la matière de la source : elle est de 9 p. 100 dans le cas du ^{60}Co , dont le spectre d'énergie des rayons β a un maximum de 0,306 MeV (87).

2) Si l'on compte séparément les impulsions provenant de chaque moitié du compteur dans un angle de 2π et si des particules sont diffusées en arrière, certaines peuvent être comptées deux fois.

On améliore ce résultat en comptant les impulsions en coïncidences qui sont déduites du nombre d'impulsions enregistrées dans un angle 4π (56).

3) Quand l'étalonnage porte sur des noyaux émetteurs de particules β^+ la désintégration pourra se produire aussi par capture d'un électron; la précision du résultat dépend de la précision avec laquelle on connaît le rapport de capture. La méthode dans ce cas nécessite la connaissance du schéma de désintégration.

En général, la préparation et la mise en route de chaque mesure demandant un temps assez long, cette méthode ne peut être utilisée pour des mesures en série. De plus, elle est limitée à la mesure d'échantillons de très faible activité (de l'ordre de 1/10 de microcurie)

et comme nous l'avons déjà vu, la méthode ne peut être utilisée pour l'étalonnage d'isotopes de courte période (inférieure à environ 10 m).

L'objet principal de notre travail a été d'étudier et de réaliser au Laboratoire Curie, une méthode absolue de mesures d'activités, fondée sur la mesure des coïncidences $\beta - \gamma$ et $\gamma - \gamma$. Cette méthode, que J. L. Putman (75) a été l'un des premiers à mettre en œuvre, ne peut naturellement être employée que lorsque des rayons γ sont associés à la désintégration β ; le schéma de désintégration est supposé connu. Des comparaisons ont été faites entre le résultat de cette méthode et ceux obtenus par la méthode d'ionisation utilisant des chambres-condensateurs remplies soit d'air, soit d'argon. Les mesures absolues que nous avons faites par ces méthodes couvrent une étendue de 1 à 100 μC environ.

CHAPITRE PREMIER

Considérations générales sur la méthode des coïncidences appliquée à la mesure des activités.

Au congrès de la Commission Internationale des Etalons, Unités et Constantes radioactifs réuni à Stockholm en 1953, les rapports présentés par W. E. Perry (72) du « National Physical Laboratory » (U. S. A.), ceux de J. L. Putman (76) et de D. B. Smith (86) de l'« Atomic Energy Research Establishment » (G. B.) suscitent d'après les résultats exposés, un nouvel intérêt pour la méthode des coïncidences.

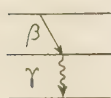
On lui préférerait jusqu'à ces temps-ci la méthode du compteur 4π , car on reprochait à la méthode des coïncidences le mauvais rendement du compteur G. M. et l'utilisation d'un temps de résolution trop long.

H. H. Selliger et A. Schwebel (85) sont les premiers à utiliser des compteurs à scintillation pour la numération des rayons γ ; nous nous sommes efforcée de mettre au point une installation à coïncidences qui fonctionne avec des compteurs à scintillations et un temps de résolution très bref, pour améliorer le plus possible la précision de la méthode.

Principe de la méthode. — Il convient tout d'abord de définir ce que sont des rayons en coïncidences dont il sera question dans cet exposé. On considère que deux rayons β ou γ sont émis simultanément, s'ils sont en coïncidences dans un intervalle de temps inférieur au temps de résolution de l'installation à coïncidences.

Nous avons étudié la méthode des coïncidences en vue de la détermination du nombre absolu de désintégrations par seconde, c'est donc

uniquement cet aspect de la méthode que nous analyserons par la suite. Une des premières remarques à faire touche à la précision de la méthode liée à la connaissance du schéma de désintégration du nucléide dont on veut déterminer l'intensité radioactive. Plus le schéma de désintégration est complexe, plus la précision de la méthode est faible ; il faut donc tenir compte des différents facteurs qui peuvent intervenir, la période d'un état métastable, les efficacités des rayonnements dus à la transition par capture ou à l'effet de conversion interne, etc.



Etudions le cas d'un schéma très simple où deux rayons de nature différente sont en coïncidences (un β et un γ par exemple). Les coïncidences entre les deux rayons, β et γ sont détectées par deux compteurs suivis d'un sélecteur de coïncidence, chaque appareil de détection étant sensible à un seul genre de rayonnement.

Dans ce cas, le nombre de coïncidences détectées par seconde s'exprime par la relation :

$$N_c = \mathfrak{N} \cdot \rho_\beta \cdot \rho_\gamma = \mathfrak{N} \cdot \omega_\beta \cdot \omega_\gamma \cdot e_\beta \cdot e_\gamma \quad 1.1$$

où : $\mathfrak{N}$ est le nombre absolu de désintégrations par seconde,

N_c = nombre de coïncidences nettes,

ρ_β et ρ_γ les rendements des compteurs.

Le rendement est exprimé par la relation suivante : $\rho = \omega \cdot e$ où ω est l'angle solide efficace et e l'efficacité du compteur pour une énergie donnée du rayonnement. L'efficacité d'un détecteur se définit généralement comme étant le rapport entre le nombre de rayons comptés par le compteur et le nombre de rayons qui arrivent dans la partie sensible du détecteur.

L'expression du nombre de rayons β et de rayons γ détectés par chaque compteur est ainsi formulée :

$$N_\beta = \mathfrak{N} \cdot \rho_\beta, \quad N_\gamma = \mathfrak{N} \cdot \rho_\gamma \quad 2.1$$

Dans ces conditions $\mathfrak{N}$ est obtenu par la relation très simple entre N_β , N_γ et N_c :

$$\mathfrak{N} = \frac{N_\beta \times N_\gamma}{N_c} \quad 3.1$$

La méthode des coïncidences permet dans ce cas de déduire le nombre de désintégrations par seconde $\mathfrak{N}$ de valeurs directement mesurables : N_β , N_γ , N_c .

Dans cette formule, les efficacités des appareils de détection n'interviennent pas. Elle peut être appliquée en raison de la simplicité des schémas de désintégrations qui contiennent dans une proportion supérieure à la précision de mesure, un rayon β émis par désintégration,

suivi d'un ou de deux photons γ_1 et γ_2 en cascade (8), (52), (53), (54), (55).

Au cas où le schéma de désintégration est plus complexe, ou si les coïncidences ont lieu entre deux particules identiques (le cas de deux photons par exemple), $\mathfrak{C}$ est exprimé par des relations qui diffèrent selon le schéma de désintégration et où peuvent intervenir les efficacités des détecteurs.

Dans la pratique, on doit tenir compte de différents autres facteurs qui limitent la précision de la méthode, à savoir la forme de l'échantillon, les coïncidences fortuites, les corrélations angulaires, etc. Nous reprendrons en détail au chapitre III la discussion des conditions qui limitent la précision des étalonnages absolus par la méthode des coïncidences.

CHAPITRE II

Les installations. Caractéristiques et fonctionnement.

A) *Installation à coïncidences pour la mesure de source de faible intensité radioactive (de l'ordre du microcurie).* — Nous avons mesuré l'activité absolue d'échantillons d'environ 1 mC, avec une installation à

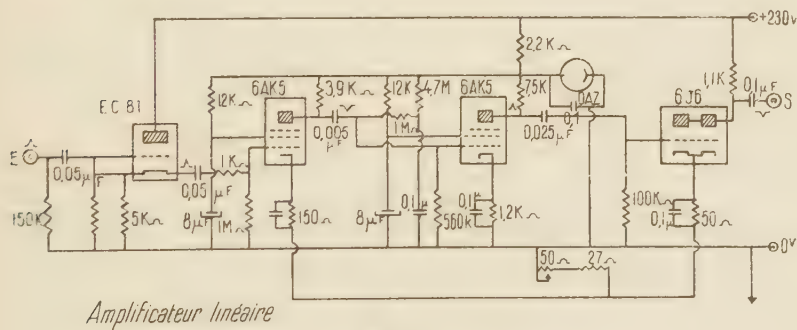


Fig. 1.

coïncidences comprenant un compteur Geiger-Müller ⁽¹⁾ à fenêtre de mica (2,5 mg/cm²) avec préamplificateur à cathode suiveuse, un compteur à scintillations avec cristal d'INa (Tl) ($d = 25$ mm), un photo-

⁽¹⁾ Pour abrégier, nous appellerons le compteur Geiger-Müller par les initiales G. M. et le compteur à scintillations par les initiales P. M.

multiplicateur R. C. A. ⁽¹⁾ 5819, suivi d'un amplificateur linéaire (gain = 50, bande passante 2 MHz) dont le schéma est représenté figure 1, et enfin d'un sélecteur à coïncidences (90).

Enfin, les installations de haute tension, capables de fournir un débit de 3 mA sous une tension maximum de 2500 V, sont stabilisées à 2 p. 10 000 près.

Fonctionnement :

Au cours des expériences, il s'est avéré utile d'éliminer les impulsions dont l'amplitude, inférieure à 0,5 V, correspond au bruit de fond du P. M., en variant le seuil de sensibilité du sélecteur à coïncidences. Le gain de l'amplificateur, ainsi que la tension sur le P. M. sont réglés de manière à ce que l'amplitude de l'impulsion soit bien supérieure au seuil de sensibilité du sélecteur à coïncidences qu'il doit attaquer. La tension appliquée aux bornes du P. M. varie autour de 1.100 V. Le fait d'utiliser deux détecteurs différents n'ayant pas le même temps de réponse, nous a obligée à choisir pour le sélecteur à coïncidences un temps de résolution ⁽²⁾ plus long. D'autre part, pour diminuer le nombre de coïncidences fortuites et augmenter ainsi la précision de la méthode, il faut réduire le temps de résolution jusqu'aux plus faibles valeurs possibles, sans toutefois introduire des pertes de coïncidences.

Un étalon de ⁶⁰Co nous a servi à déterminer quelles sont les valeurs du temps de résolution les mieux adaptées aux besoins de notre installation.

En comptant avec les compteurs séparés et protégés par du plomb, le nombre de rayons β , γ , et le nombre de coïncidences, provenant de deux sources distinctes, on déduit $\mathfrak{C}$ de la relation :

$$1.11 \quad N_{c.f.} = (T_1 + T_2)N_{\beta} \times N_{\gamma} = 2\mathfrak{C}N_{\beta} \cdot N_{\gamma}.$$

Le retard entre les impulsions, provenant de deux compteurs différents, peut introduire des pertes de coïncidences et fausser le résultat des étalonnages.

En introduisant des retards variables sur chaque voie de passage des rayonnements, nous avons étudié la variation du rendement des coïncidences en fonction du retard. Nous avons ainsi tracé la courbe qui représente la proportion des coïncidences comptées en fonction du retard introduit sur l'une des voies (fig. 2).

On a fait la même étude pour deux temps de résolutions différents : $\mathfrak{C} = 0,3$ et $0,6 \times 10^{-6}$ sec. Les résultats indiquent que le rendement est maximum pour un retard entre les deux voies dont la valeur est comprise entre 0 et 2×10^{-6} sec, le temps de résolution étant de

⁽¹⁾ Radio Corporation of America.

⁽²⁾ Nous avons défini le temps de résolution $\mathfrak{C}$ au chapitre premier de ce mémoire.

$0,3 \cdot 10^{-6}$ sec. On peut utiliser un temps de montée de l'impulsion de l'ordre de 10^{-6} sec. tandis que δ est de l'ordre de quelques 10^{-7} sec. car il suffit que les impulsions qui sont très amplifiées dépassent le seuil de sensibilité du sélecteur de coïncidences en un temps qui correspond au temps de résolution.

Un autre phénomène qui peut avoir comme conséquence des pertes sensibles de coïncidences, est le temps de latence ⁽¹⁾ du compteur G. M., qui est d'environ $2 \cdot 10^{-7}$ sec. Pour éviter les pertes de coïncidences, nous avons étudié la variation du rendement des coïncidences en fonc-

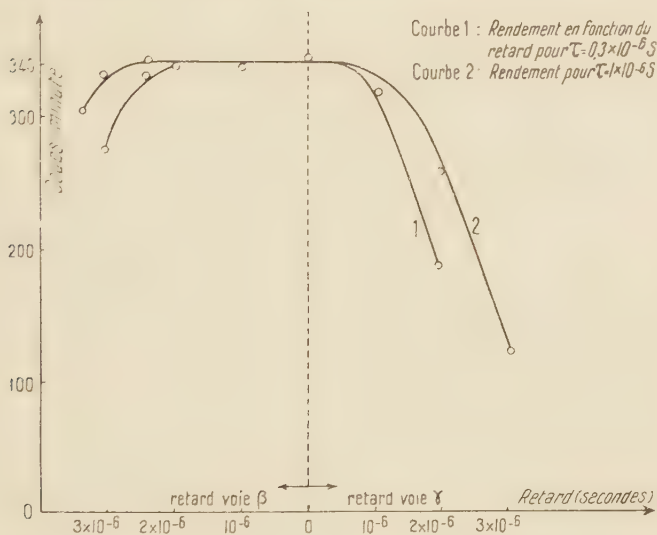


Fig. 2.

tion de la tension appliquée au compteur, tension dont dépend le temps de latence; en conséquence, nous avons effectué nos expériences en nous plaçant dans la région où le rendement est maximum (~ 95 p. 100).

B) *Installation à coïncidences pour la mesure de sources intenses (supérieures à $10 \mu C$).* — La précision de la méthode des coïncidences dépend surtout du rapport des coïncidences fortuites et des coïncidences vraies :

$$2.II \quad N_{c.f.}/N_c = \frac{2\bar{\epsilon} \bar{\epsilon}_\beta \bar{\epsilon}_\gamma \rho_\beta \rho_\gamma}{\bar{\epsilon}_\beta \bar{\epsilon}_\gamma \rho_\beta \rho_\gamma} = 2\bar{\epsilon} \bar{\epsilon}_\beta \bar{\epsilon}_\gamma.$$

⁽¹⁾ Le temps de latence est l'intervalle de temps compris entre l'arrivée de l'agent ionisant et le déclenchement de la décharge.

Pour étalonner avec précision un échantillon dont le nombre de désintégrations par seconde $\mathfrak{N}$ est grand, il faut diminuer le plus possible le temps de résolution, sans introduire de pertes de coïncidences. C'est pourquoi nous avons mis au point une installation qui fonctionne avec des taux de numération élevés (40 000 coups/min) et un temps de résolution de 0,3 à $0,2 \times 10^{-6}$ sec. Nous avons entrepris d'améliorer en premier le taux de numération du compteur β qui est d'environ 8 000 coups/min, pour un compteur G. M. ordinaire. A la sortie du compteur G. M. a été adapté un dispositif interrupteur de décharge conçu au Laboratoire des Constructions électriques du C. E. A. à Saclay (S.-et-O.).

D'autres auteurs (24), (25), (32), (37), (74), ont conçu dans le même but des schémas basés sur des principes différents, nous avons préféré adopter celui de P. Picard et Rogozinski (73) en raison de la simplicité de son schéma de structure et de son fonctionnement.

Le dispositif consiste en un monovibrateur qui limite la décharge dans le compteur (fig. 3) et fonctionne durant un temps inférieur à 10^{-7} sec. après le déclenchement de la décharge. Le début de l'impulsion est bien défini, son amplitude peut atteindre plusieurs dizaines de volts, et en plus, le temps mort du compteur est sensiblement réduit, de 200×10^{-6} sec à 10^{-6} sec. L'allure de l'impulsion obtenue est représentée par la courbe II de la figure 4. La courbe I représente la forme de l'impulsion sortant du compteur G. M. en l'absence du monovibrateur.

Nous avons étudié le palier du compteur G. M. muni du circuit à réaction, palier qui est représenté par la courbe de la figure 5. On voit que le palier qui s'étend sur 150 V avec une pente de 3 p. 100 pour 100 V est très bon pour un compteur usagé, ceci résultant de la diminution du temps mort et des impulsions parasites.

Nous avons mesuré le taux de numération maximum — sans pertes importantes — du compteur G. M. monté avec le monovibrateur, en étudiant la décroissance d'un élément de courte période. Dans notre cas, c'est l'émanation du thorium qui a servi à cette étude, dont la période est de 51,5 sec. La méthode consiste à comparer la courbe de la décroissance apparente trouvée expérimentalement avec la courbe de décroissance réelle; la différence entre le taux de numération obtenu expérimentalement et le taux de numération vraie représente la perte de comptage. Nous avons effectué des mesures dont chaque série se compose de mesures de 3 à 5 min, espacées à des intervalles réguliers pendant environ 90 min. Chaque numération étant effectuée dans un certain intervalle de temps, nous avons dû calculer les valeurs de N_{t_1} , N_{t_2} ... N_{t_n} nombres de chocs au temps t_1 , t_2 ... t_n (c'est-à-dire comptés au début de chaque mesure).

N_1 , N_2 ... N_n représentant le nombre de chocs comptés dans les

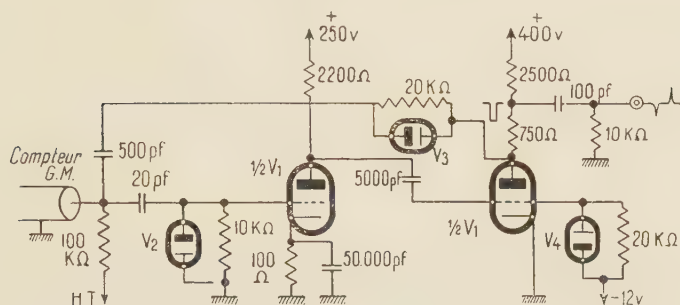
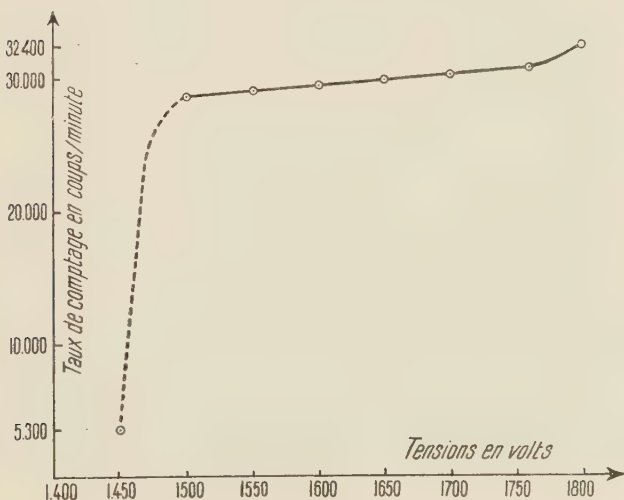
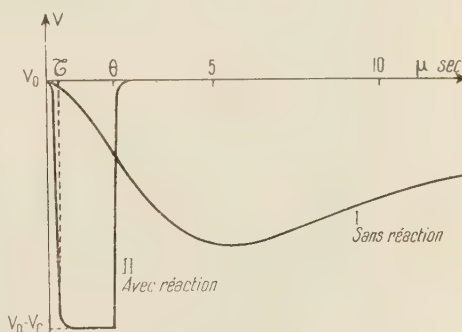
Fig. 3. — Schéma du monovibrateur utilisé avec le compteur β .

Fig. 4.

Courbe I : Forme de l'impulsion sortant du compteur β sans réaction.

Courbe II : Forme de l'impulsion avec le monovibrateur.

Fig. 5. — Palier du compteur β de construction C. E. A., avec dispositif interrupteur de décharge, après 26 mois d'usage.

intervallos de temps $\theta_1, \theta_2, \dots, \theta_n$ et λ , la constante radioactive, nous avons calculé les valeurs de $N_1, N_2, \dots, N_n$ des relations suivantes :

$$3.11 \quad N_n = \int_0^{\theta_n} N_n e^{-\lambda \theta} d\theta = N_{t_n} \left(\frac{1 - e^{-\lambda \theta_n}}{\lambda} \right).$$

$$4.11 \quad N_{t_n} = \frac{N_0 \lambda}{1 - e^{-\lambda \theta_n}}.$$

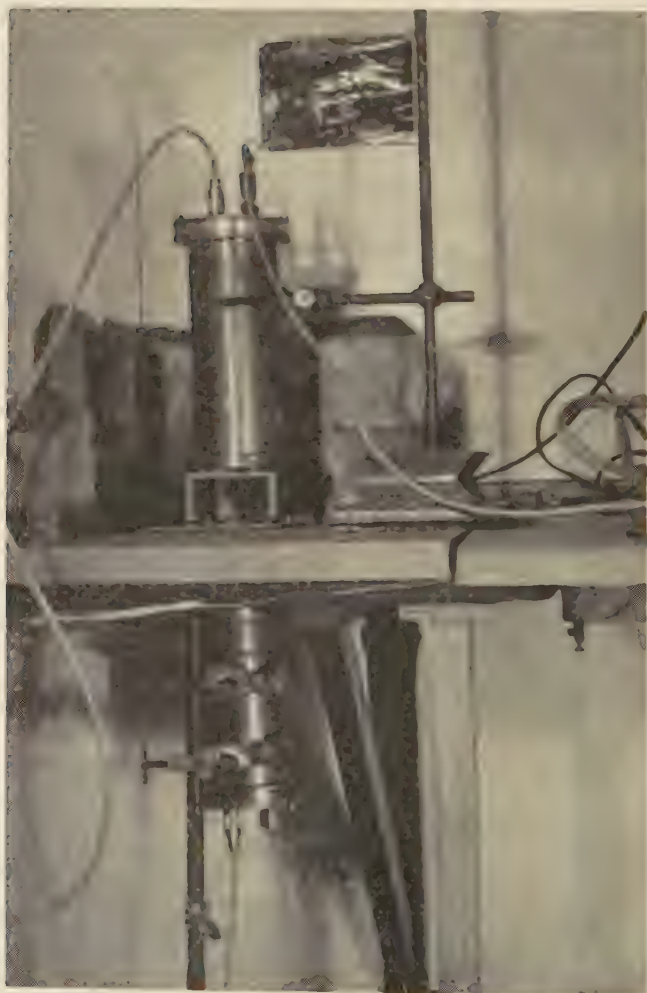


Fig. 6. — Installation pour la mesure des coïncidences $\gamma - \gamma$

Cette expérience nous a indiqué jusqu'à quelle limite les pertes de numération sont relativement faibles; cette limite correspond à des taux de numération d'environ 40 000 coups/min pour le cas de l'installation à coïncidences rapides. Le circuit à réaction adapté au compteur G. M. nous a permis, d'une part, de réduire sensiblement le temps utilisé par l'impulsion provenant du compteur pour déclencher le sélecteur à coïncidences, d'autre part, d'améliorer le taux de numération du compteur G. M. d'un facteur 10 et de réduire le temps de résolution (de l'ordre de 10^{-7} sec), sans qu'il y ait de perte de coïncidences.

Pour la détection des rayons γ , nous avons utilisé la même installation, décrite précédemment.

L'installation à coïncidences $\gamma - \gamma$ comprend deux compteurs à scintillations identiques montés de la même manière que dans l'installation décrite précédemment. Les compteurs sont placés symétriquement par rapport à la source et l'on peut déplacer l'un par rapport à l'autre, de manière à varier l'angle entre les deux compteurs à scintillations. La figure 6 représente l'installation à coïncidences utilisée, comprenant les compteurs à scintillations.

L'installation fonctionne avec un temps de résolution de l'ordre de de 10^{-7} sec. Le tableau I compare les résultats obtenus pour la mesure absolue d'activité β d'une source étalon, quand on varie le temps de résolution.

TABLEAU I

Comparaison des résultats obtenus pour différentes valeurs du temps de résolution.

Installation utilisée pour l'étalonnage de sources faibles				Installation utilisée pour l'étalonnage de sources plus intenses		
Temps de résolution en μ sec	Étalon ^{60}Co	$8,95 \cdot 10^{-1} \mu\text{c} \pm 1 \text{ p. } 100$		Étalon ^{60}Co	$10,2 \mu\text{c} \pm 3 \text{ p. } 100$	
	Coïncidences fortuites (en coups/minute)	Résultats de l'étalonnage en μc	Différence avec la valeur de l'étalon p. 100	Coïncidences fortuites (en coups/minute)	Résultats de l'étalonnage en μc	Différence avec la valeur de l'étalon (p. 100)
$1,8 \cdot 10^{-6}$	188	8,82	1,4	130	11,2	8
$1,0 \cdot 10^{-6}$	174	8,99	0,5	102	10,6	4
$0,6 \cdot 10^{-6}$	142	9,09	1,6	83	10,5	3
$0,3 \cdot 10^{-6}$	25	7,55	16	71	10,6	4
$0,1 \cdot 10^{-6}$	17	6,90	22	47	12,0	17

C) **Installation pour mesures absolues par effet d'ionisation.** — La chambre d'ionisation à rayons γ . — Un faisceau de rayons γ canalisé à l'aide d'écrans de plomb pénètre dans la chambre. Le courant d'ionisation obtenu par absorption de ces rayons, dans le gaz de la chambre, a pour expression :

$$5.11 \quad A = \left[N \cdot q \cdot \frac{\Omega}{4\pi} h\nu l e^{-(a+\mu\delta)} ({}_A\mathfrak{C} + {}_A\sigma_c + {}_A\chi) n \cdot \frac{e}{E} \right] K$$

où : N, nombre de désintégrations/sec,

q , nombre de γ émis par désintégration,

$h\nu$, l'énergie des photons,

l , longueur de la chambre,

$a + \mu\delta$, coefficient d'absorption linéaire total,

${}_A\mathfrak{C} + {}_A\sigma_c + {}_A\chi$, coefficient d'absorption dans le gaz par effet Compton, etc.,

n , nombre de molécules dans le gaz,

E , énergie nécessaire pour la formation d'une paire d'ions dans le gaz,

Ω , angle solide utilisé.

En mesurant le courant d'ionisation, on peut déduire le nombre de désintégrations par seconde, le schéma de désintégration étant connu ainsi que l'efficacité de la chambre pour l'énergie $h\nu$ des rayons.

M. P. Savel a déterminé cette efficacité pour des photons dont l'énergie s'étend de 240,6 keV à 2 193 keV et a tracé la courbe de rendement K , de la chambre par rapport à $h\nu$.

La précision est seulement d'environ 4 p. 100 dans le domaine des énergies de 500 keV. Nous avons calculé les coefficients d'absorption des rayons γ par l'effet photoélectrique, l'effet Compton et de matérialisation compris dans l'expression du courant d'ionisation d'après les formules données par Sauter et Hulme, Klein et Nishina, Bethe et Heitler. M. P. Savel décrit en détail la chambre et son fonctionnement dans un article paru aux *Cahiers de Physique* en 1944 (80). Nous avons étalonné avec cette chambre des radioéléments émetteurs de rayons γ dont les énergies varient de 0,66 MeV (^{137}Cs) à 2,76 MeV (^{24}Na). L'intensité de ces préparations était supérieure à 100 μC .

CHAPITRE III

Les étalonnages absolus : conditions expérimentales, marche des expériences et résultats.

Ce chapitre traite des conditions pour obtenir une bonne précision de mesure et des résultats obtenus. Le tableau III les résume.

A) **La préparation des échantillons à étalonner.** — Nous avons tenu à

contrôler au cours de nos expériences les résultats obtenus par la méthode des coïncidences à l'aide de mesures faites par d'autres méthodes : compteur 4π , compteur à liquide et méthode de l'angle solide défini. Pour comparer nos résultats entre eux, nous avons préparé des échantillons d'une même solution mère, par la méthode des parties aliquotes (30).

La solution appelée « solution mère » sert à la préparation des autres solutions qui, après dilution convenable, sont utilisées à leur tour pour la préparation des échantillons de plus faibles intensités. Elle sert aussi à la préparation des échantillons de fortes intensités qui sont étalonnés avec la chambre d'ionisation. En tenant compte du rapport des dilutions on peut comparer les résultats obtenus par les différentes méthodes.

Pour éviter les erreurs qui pourraient provenir de la dilution par la méthode volumétrique, il est préférable d'effectuer la dilution par pesée. Nous avons utilisé pour la préparation des échantillons une microbalance dont la précision est de 0,002 mg. Le temps de chaque pesée est chronométré de façon à pouvoir faire la correction due à l'évaporation de la solution ; nous avons déterminé au préalable quelle est la quantité X de solution évaporée par unité de temps. Les supports de sources étaient en formal-vinyle ou en chlorure de polyvinyle, d'une épaisseur de 5 à 10 μ g par centimètre carré. Les échantillons de ^{24}Na ont été préparés d'une solution contenant $0,1048 \pm 0,0001$ g de CO_3Na_2 irradié dissous dans 10 cm^3 d'eau ; les solutions de sels de ^{60}Co , ^{46}Sc et de ^{137}Cs , chimiquement pures, provenaient du Laboratoire national de Oakridge (U. S. A.). Les solutions de ^{22}Na et ^{198}Au ont été spécialement préparées par le Laboratoire de radio-isotopes de Harwell (Grande-Bretagne), pour des mesures absolues de comparaison.

Une solution d'or homogène pour la préparation d'échantillons radioactifs est assez délicate à réaliser, à cause de l'instabilité des sels solubles d'or qui, en solution neutre, précipitent sous forme colloïdale. La méthode adoptée par le Laboratoire de Harwell, que nous avons utilisée par la suite, consiste à dissoudre une feuille d'or battue dans le minimum d'eau régale. L'excès d'acide étant enlevé par filtrage avec une pompe à vide, le précipité est ensuite dissous dans une solution à 2 p. 100 de CNK, on obtient ainsi le complexe $\text{Au}(\text{CN})_3\text{K}$.

Cette solution présente deux inconvénients :

Elle n'est stable que si son pH est maintenu entre 2 et 3, sinon le sel s'hydrolyse en solution neutre et l'on obtient un précipité colloïdal jaune.

Deuxièmement, elle est volatile, ce qui rend très délicate la préparation par pesée des micro-échantillons.

On a constaté expérimentalement que la correction de pesée était de 0,1 mg par minute à cause de l'évaporation de la solution pendant la durée de la pesée.

Pour vérifier l'homogénéité de la solution, nous avons étudié les écarts sur la mesure de l'activité spécifique, obtenue par l'étalonnage d'échantillons préparés en parties aliquotes.

Le tableau ci-dessous résume les résultats obtenus :

TABLEAU II

	Écarts p. 100	Poids de l'échantillon (en mg)	A/M en désint. par min/mg		Écarts p. 100	Poids de l'échantillon	A/M en désint. par sec/mg
¹⁹⁸ Au	1	26,485	7,30 . 10 ⁶	²² Na	2	5,690	1,585 . 10 ⁴
	5	4,635	7,414 . 10 ⁶		0,3	1,065	1,560 . 10 ⁴
	0,5	9,601	7,070 . 10 ⁶		0,6	4,191	1,568 . 10 ⁴
	3	5,559	6,88 . 10 ⁶		3,7	83,985	1,61 . 10 ⁴
A = activité absolue. M = masse.							

B) *Les étalonnages par la méthode des coïncidences.* — Nous avons utilisé la méthode des coïncidences pour étudier l'étalonnage absolu des radioéléments suivants : ^{22}Na , ^{60}Co , ^{46}Sc , ^{24}Na , ^{64}Cu et ^{198}Au .

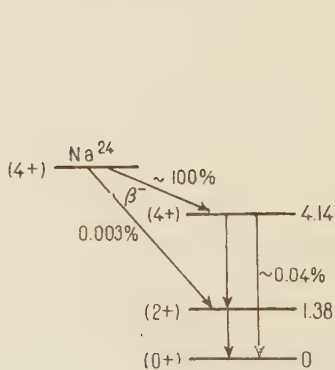


Fig. 7.

Schéma de désintégration du ^{24}Na .

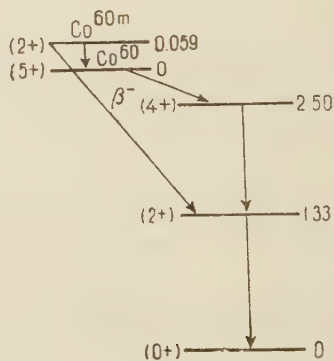


Fig. 8.

Schéma de désintégration du ^{60}Co .

Quand le schéma le permettait, nous avons étudié les deux méthodes, fondées sur la mesure des coïncidences $\beta - \gamma$ et celle des coïncidences $\gamma - \gamma$. Nous verrons en détail à la fin de ce chapitre les résultats obtenus par la méthode des coïncidences et par les méthodes de contrôle, ainsi que la comparaison de ces résultats avec ceux obtenus dans d'autres laboratoires.

On démontre que dans le cas du ^{24}Na , ^{60}Co et ^{46}Sc , le nombre absolu de désintégrations par unité de temps ($\mathcal{N}$) est exprimé par une relation identique à la formule 3.I, en raison de la simplicité du schéma de désintégration (fig. 7, 8 et 9) qui se compose d'un β suivi par deux γ en cascade :

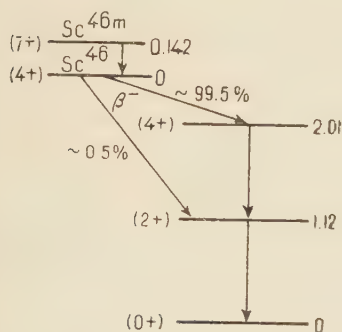


Fig. 9.

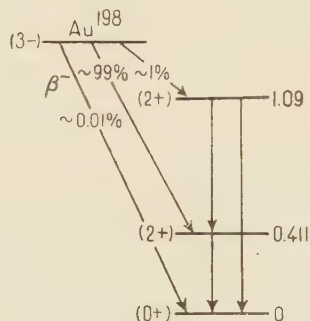


Fig. 10.

Schéma de désintégration du ^{46}Sc . Schéma de désintégration de l' ^{198}Au .

$$\begin{aligned}
 1. \text{III} \quad & \left\{ \begin{aligned} N_{\beta} &= \mathcal{N} \rho_{\beta} \\ N_{\gamma} &= \mathcal{N} (\rho_{\gamma_1} + \rho_{\gamma_2}) \\ N_c &= \mathcal{N} (\rho_{\beta} \rho_{\gamma_1} + \rho_{\beta} \rho_{\gamma_2}) \end{aligned} \right. \\
 2. \text{III} \quad & \frac{N_1 \times N_2}{N_c} = \frac{\mathcal{N}^2 \rho_{\beta} (\rho_{\gamma_1} + \rho_{\gamma_2})}{\mathcal{N} \rho_{\beta} (\rho_{\gamma_1} + \rho_{\gamma_2})} = \mathcal{N}.
 \end{aligned}$$

N_{β} , N_{γ_1} et N_{γ_2} sont les taux de numération des particules β et γ ; ρ_{β} , ρ_{γ_1} et ρ_{γ_2} sont les rendements des appareils de détection et $\mathcal{N}$ est le nombre absolu de désintégrations par seconde.

CAS DE L' ^{198}Au . — Dans le cas de l' ^{198}Au , le schéma de désintégration représenté figure 10 (20) (38), étant beaucoup plus complexe nous avons tenu compte de la proportion des différents rayonnements émis.

Nous dénommons e_{β_1} , e_{β_2} ... etc. les efficacités du compteur pour l'énergie maximum de chaque spectre β émis par désintégration, e_{γ_1} ,

$e_{\gamma_2} \dots e_{\gamma_n}$ désignent les efficacités du compteur à scintillations pour différentes énergies des photons. Il est à remarquer que pour les photons d'énergie supérieure à 400 keV, l'efficacité du P. M. est sensiblement la même. On a donc :

TABLEAU III

Proportion de chaque rayonnement (pour 100 désintégrations)	Nature du rayonnement	Énergie (correspondant au maximum du spectre pour les β)	Efficacité des compteurs
99	β	0,959 MeV	e_β
96,7	γ	0,412 MeV	e_{γ_1}
0,8	β	0,290 MeV	e_β
0,8	γ	0,676 MeV	e_{γ_1}
4,1	e^-	0,330 MeV	e_β (Conversion interne)
4,1	X	0,08 MeV	e_{γ_2} (Conversion interne)

On a négligé l'embranchement qui correspond à 0,5 p. 100 du nombre total de désintégrations. L'efficacité du compteur G. M. est la même pour les β qui forment un spectre avec la limite maximum à 0,959 MeV et pour les e^- de 0,330 MeV (raie monochromatique) ; c'est pourquoi on est obligé de déduire du nombre de désintégrations par unité de temps ($\mathcal{N}$) obtenu par coïncidences, 4,1 p. 100 dus aux électrons de conversion interne qui sont comptés par le G. M. et qui ne sont pas comptés en coïncidences.

En déduisant du nombre de β comptés ceux de conversion interne on a les relations suivantes :

$$3.III \quad \begin{cases} N_\beta = 0,998 \mathcal{N} e_\beta \omega \cong \mathcal{N} e_\beta \omega \\ N_\gamma = 0,957 \mathcal{N} e_{\gamma_1} \omega + 0,041 \mathcal{N} e_{\gamma_2} \omega \\ N_e = [0,957 e_\beta e_{\gamma_1} + 0,041 e_\beta e_{\gamma_2}] \mathcal{N} \omega^2 \end{cases}$$

$$4.III \quad \begin{cases} \frac{N_\beta \times N_\gamma}{N_e} = \frac{\mathcal{N}^2 e_\beta \omega^2 (0,957 e_{\gamma_1} + 0,041 e_{\gamma_2})}{\mathcal{N} e_\beta \omega^2 (0,957 e_{\gamma_1} + 0,041 e_{\gamma_2})} \\ \frac{N_\beta \times N_\gamma}{N_e} = \mathcal{N} \text{ à } 0,2 \text{ p. } 100 \text{ près.} \end{cases}$$

Les coefficients sont obtenus du schéma de désintégration de l' ^{198}Au (10), (38).

C) *Les mesures pour la méthode des coïncidences $\gamma - \gamma - 1$*) DANS LE CAS DES COÏNCIDENCES ENTRE DEUX PARTICULES IDENTIQUES, c'est le cas de deux photons, l'expression de $\mathfrak{N}$ n'est pas indépendante de l'efficacité des compteurs :

$$5.\text{III} \quad \begin{cases} N_{\gamma_1} = \mathfrak{N}(\rho_1 + \rho_2) \\ N_{\gamma_2} = \mathfrak{N}(\rho_1 + \rho_2) \\ N_c = 2\mathfrak{N}\rho_1 \cdot \rho_2. \end{cases}$$

$$6.\text{III} \quad \frac{N_{\gamma_1} \times N_{\gamma_2}}{N_c} = \frac{\mathfrak{N}^2(\rho_1 + \rho_2)^2}{2\rho_1\rho_2}$$

d'où :

$$\mathfrak{N} = 2 \frac{N_{\gamma_1} \times N_{\gamma_2}}{N_c} \frac{\rho_1 \times \rho_2}{(\rho_1 + \rho_2)^2}.$$

Si :

$$\rho_1 = \rho_2,$$

on a :

$$\frac{N_{\gamma_1} \times N_{\gamma_2}}{N_c} = \frac{4\mathfrak{N}^2\rho^2}{2\mathfrak{N}\rho^2} = 2\mathfrak{N}$$

d'où :

$$7.\text{III} \quad \mathfrak{N} = \frac{N_{\gamma_1} \times N_{\gamma_2}}{2N_c}.$$

Dans ces relations les différentes valeurs de N_{γ_1} , N_{γ_2} , etc., ont la même signification que dans les formules 1, 2, 3 et 4.III. En comparant les formules 6 et 7.III, on trouve que le terme $\frac{\rho_1 \rho_2}{(\rho_1 + \rho_2)^2}$ est égal à 0,250 quand les rendements sont égaux. On a représenté la variation de l'efficacité déterminée expérimentalement en fonction des différentes énergie des rayons γ . L'étude a été faite avec le cristal d'Ina utilisé au cours de nos expériences et qui avait les dimensions suivantes : diamètre : 4,5 cm et épaisseur : 5 cm.

La différence entre nos résultats et ceux trouvés par les auteurs étrangers (5) ne dépasse pas 6 p. 100, dans le domaine des énergies comprises entre 0,511 MeV et 2,62 MeV. A l'aide de la courbe d'efficacité nous avons calculé le terme $\rho_1\rho_2/(\rho_1 + \rho_2)^2$ et nous avons constaté que sa valeur est de $0,250 \pm 0,8$ p. 100 dans le cas du ^{60}Co , ^{24}Na et ^{46}Sc , et de $0,247 \pm 1$ p. 100 pour les γ du ^{22}Na (0,511 et 1,33 MeV).

2) LES CORRÉLATIONS ANGULAIRES. — Dans le cas où les rayonnements émis par désintégration présentent une certaine corrélation

angulaire, il faut tenir compte de cette répartition anisotrope des rayons; dans le cas contraire les valeurs N_β , N_γ et N_c ne sont plus correctes.

Les corrélations $\beta - \gamma$. — Les résultats des travaux de différents auteurs (63), (39), (46), qui ont eu comme objet l'étude des corrélations $\beta - \gamma$ ont montré que dans le cas du ^{60}Co , ^{24}Na , ^{46}Sc et ^{198}Au , il n'y avait pas de corrélation angulaire entre la particule β émise par désintégration et les rayons γ .

Les corrélations angulaires $\gamma - \gamma$. — Après Dunworth (35) qui a le premier émis l'hypothèse d'une répartition angulaire non isotrope dans certains cas où deux photons sont émis en cascade, Hamilton (46) a étudié théoriquement la question en 1940. Plus tard d'autres auteurs ont généralisé ces résultats (39), (77). La fonction de corrélation $W(\theta)$ pour deux rayons successifs est de la forme :

$$8.\text{III} \quad W(\theta) = 1 + \sum_{i=1}^{i=l} a_i \cos^{2i} \theta.$$

Le coefficient a_i dépend à la fois des ordres polaires l_1 et l_2 , des rayons γ émis, et des spins j_1 , j_2 , j_3 des états initial, intermédiaire et final, i étant plus petit ou égal à la plus petite valeur de l_1 , l_2 et j_2 .

On voit que $W(\theta)$ est une somme de puissances paires de $\cos \theta$.

On trouve dans les tables (64), (7), (41) les valeurs du coefficient a_i en fonction de l_1 , l_2 et j_2 . Dans le cas du ^{24}Na , ^{60}Co et du ^{46}Sc , la désintégration est de la forme :

$$\begin{array}{ccccc} j_1 & \xrightarrow{l_1} & j_2 & \xrightarrow{l_2} & j_3 \\ l_1 & \xrightarrow{+E(2)} & 2+ & \xrightarrow{E(2)} & 0+ \end{array}$$

Dans ce cas $i=2$ et la fonction de corrélation angulaire du ^{24}Na , ^{46}Sc , ^{60}Co est la suivante :

$$9.\text{III} \quad W(\theta) = 1 + a_1 \cos^2 \theta + a_2 \cos^4 \theta.$$

Nous avons calculé les coefficients d'après la méthode et à l'aide des tables indiquées plus haut. Dans notre cas, nous avons calculé la fonction $W(\theta)$ normalisée, c'est-à-dire que nous avons posé la condition :

$$10.\text{III} \quad \int_{\pi/2}^{\pi} W(\theta) \sin \theta d\theta = 1$$

qui exprime la somme des coïncidences obtenues pour différentes valeurs de θ comprises entre $\frac{\pi}{2}$ et π est égale à 1. La fonction de corrélation angulaire ainsi normalisée est exprimée par l'équation :

$$11.\text{III} \quad W(\theta) = 0,95 + 0,12 \cos^2 \theta + 0,04 \cos^4 \theta.$$

En calculant $W(\theta)$ pour différentes valeurs de θ nous avons obtenu les valeurs qui représentent la variation anisotrope théorique de la fonction de corrélation angulaire $W(\theta)$ en fonction de θ ; cette variation nous l'avons représentée dans la courbe 1, figure 14. La répartition isotrope des coïncidences pour un même taux de comptage dans le cas où il n'y a pas de corrélation angulaire, est représentée par une droite d'ordonnée 1. Nous avons constaté pour les corps utilisés, que la variation de la fonction $W(\theta)$ est faible, de 0,95 pour 90° à 1,11 pour 180° .

L'abscisse du point d'intersection de la courbe théorique représentant $W(\theta)$, avec la droite de répartition isotropique, nous donne l'angle sous lequel le nombre de coïncidences comptées correspond aux coïncidences nettes s'il n'y avait pas de corrélation angulaire. Dans le cas du ^{60}Co , ^{24}Na et ^{60}Co , cet angle est de 130° .

Nous avons aussi représenté le résultat expérimental de la mesure des coïncidences $\gamma - \gamma$ sous différents angles pour les trois corps étudiés (courbes, 2, 3, 4, fig. 14, et tableau IV).

TABLEAU IV

*Comparaison des mesures par coïncidences $\gamma - \gamma$
pour différentes valeurs de l'angle θ .
(valeurs indiquées en désintégrations par minute).*

	$\theta = 90^\circ$	$\theta = 130^\circ$	$\theta = 180^\circ$	Variation théorique de $W(\theta)$ entre 90° et 180°
^{60}Co	$3,182 \cdot 10^6$	$3,170 \cdot 10^6$	$2,881 \cdot 10^6$	17 p. 100
^{24}Na	$3,185 \cdot 10^6$	$3,166 \cdot 10^6$	$3,104 \cdot 10^6$	17 p. 100
^{46}Sc	$0,910 \cdot 10^6$	$0,891 \cdot 10^6$	$0,871 \cdot 10^6$	17 p. 100

Les résultats expérimentaux ont été normalisés de manière qu'ils correspondent au même nombre total de coïncidences que la courbe théorique. Expérimentalement pour chaque corps étudié la droite et l'angle de répartition isotrope ont été trouvés par la méthode de comparaison des surfaces. Nous avons découpé dans une même feuille de papier la surface représentant $\int_{\pi/2}^{\pi} W(\theta) \sin \theta = 1$, obtenue expérimentalement.

talement et celle obtenue des valeurs théoriques. Nous avons comparé ensuite le résultat des pesées et obtenu ainsi le point d'ordonnée 1.

L'angle de répartition isotrope trouvé expérimentalement diffère d'environ 8 p. 100 de celui obtenu par calcul théorique.

On a étudié aussi les coïncidences $\gamma-\gamma$ entre deux photons obtenus par la matérialisation du positon émis dans le cas de la désintégration du ^{64}Cu et du ^{22}Na (schémas fig. 11 et 12).

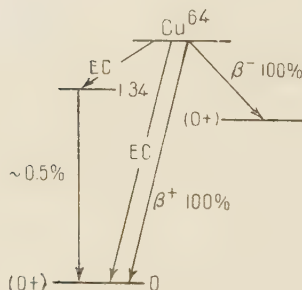


Fig. 11.

Schéma de désintégration du ^{64}Cu .

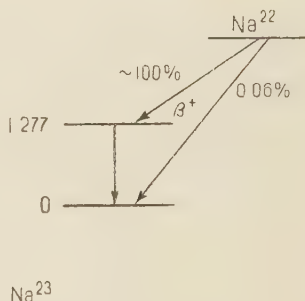


Fig. 12.

Schéma de désintégration du ^{22}Na .

On sait que la dématérialisation d'un positon a lieu avec la formation de deux photons, dont les trajectoires font un angle de 180° entre elles, ce qui fait que la répartition spatiale des rayons γ est nettement anisotrope. En effectuant l'étude de l'étalonnage absolu par la mesure des coïncidences $\gamma-\gamma$ du ^{22}Na et du ^{64}Cu , les deux compteurs à scintillations doivent être placés à 180° l'un de l'autre.

On trouvera au paragraphe E de ce chapitre l'exposé des résultats et leur comparaison avec la théorie et les travaux étrangers.

D) Autres causes d'erreurs. — 1) LES COÏNCIDENCES FORTUITES. — Les conditions expérimentales rendent impossible la réalisation d'un temps de résolution parfaitement adapté aux nécessités de mesures. On est donc obligé de déduire du nombre de coïncidences comptées, les coïncidences fortuites, qui sont déterminées selon la méthode décrite au chapitre précédent.

Les erreurs provenant des fluctuations du temps de résolution sont négligeables car les coïncidences fortuites interviennent comme facteur de correction.

L'erreur absolue qui intervient sur le nombre de coïncidences réelles s'exprime :

$$\Delta c. \text{ réelles} = \Delta c. \text{ comptées} + \Delta c. \text{ fortuites.}$$

Avec l'installation à coïncidences lentes, l'erreur provenant des coïncidences fortuites était d'environ 1 p. 100 ; cette erreur nous l'avons réduite avec l'installation à coïncidences rapides.

Citons deux exemples de mesures, l'une faite avec l'installation à coïncidences rapides, l'autre avec l'installation à coïncidences lentes :

	Nombre d'impulsions enregistrées en 30 minutes					
	N_β	$N_{\gamma'}$	N_γ	N_c	$N_{\gamma-\gamma}$	N_{cf}
Mesure en coïncidences rapides .	405 000	13 625	321 000	5 210	120	170
		$\sqrt{N_{\gamma'}/N_\beta}$		$\sqrt{N_{\gamma-\gamma}/N_c}$		$\sqrt{N_{cf}/N_c}$
Erreurs en p. 100		0,03		0,3		0,2
	Nombre d'impulsions enregistrées en 30 minutes					
	N_β	$N_{\gamma'}$	N_γ	N_c	$N_{\gamma-\gamma}$	N_{cf}
Mesure en coïncidences lentes .	60 000	910	120 000	900	90	120
Erreurs en p. 100 .		0,05	1,2		1	

Légendes :

- N_β : c'est le nombre de particules comptées.
 N_γ : c'est le nombre de rayons comptés.
 $N_{\gamma'}$: c'est le nombre de rayons comptés avec le G. M.
 N_c : c'est le nombre de coïncidences comptées.
 $N_{\gamma-\gamma}$: c'est le nombre de coïncidences $\gamma - \gamma$ comptées.
 N_{cf} : c'est le nombre de coïncidences fortuites.

2) LA DIFFUSION EN ARRIÈRE DES ÉLECTRONS MOUS. — Ce phénomène appelé « back-scattering » dans les ouvrages anglo-saxons est d'autant plus important que la matière qui compose l'échantillon et son support est plus épaisse. La diffusion en arrière des électrons mous a comme effet de perturber la vraie valeur du nombre de particules β qu'on devrait enregistrer ; N_β n'est plus alors rigoureusement égal à $\pi\omega_\beta e$.

Mrs. Suzor et Charpak (88) ont tracé la courbe qui représente la proportion de diffusion en arrière d'électrons de 140 kW, en fonction de l'épaisseur d'un support d'aluminium. D'après cette courbe, on constate que dans le cas d'un support d'Al de 1 mg/cm², il y a 10 p. 100 de diffusion en arrière. En vue de réduire le plus possible ce phénomène, une étude systématique de l'étalement des solutions polymoléculaires nous a permis (94) de réaliser des supports d'une épaisseur comprise entre 0,1 et 0,05 μ . Dans ces conditions, l'effet de diffusion en arrière des électrons nous est complètement négligeable ($\approx 10^{-3}$).

3) LA PÉRIODE DE DÉSINTÉGRATION. — Selon J. L. Putman (75), on réduit l'erreur causée par la décroissance à un très faible degré, si l'on prend la moyenne des taux de numération au temps t_0 et t .

On trouve alors :

$$12.III \quad \frac{N_{\beta} \times N_{\gamma}}{N_c} = \frac{N_{\beta_0} \times N_{\gamma_0}}{N_{c_0}} \left(1 + \frac{\lambda^2 t^2}{12} \right)$$

où :

$$N_{\beta_0}, N_{\gamma_0}, N_{c_0}$$

sont les taux de numération des β des γ , et des coïncidences au temps $t = 0$.

Au cas où le temps de mesure et la période sont connus, la relation ci-dessus permet de calculer aisément l'erreur.

En ce qui nous concerne dans le cas du ^{24}Na et du ^{64}Cu , nous avons eu à tenir compte de la période de désintégration. Pour réduire au maximum l'erreur possible, nous avons pris soin d'effectuer l'étalonnage en un temps d'environ $1/20$ de la période, ce qui réduit l'erreur provenant de la décroissance à un degré inférieur à 1 p. 100 ($\cong 0,25$ p. 100).

4) LE MOUVEMENT PROPRE. — Avec l'installation à coïncidences rapides nous avons pu diminuer l'erreur relative due au mouvement propre, jusqu'à une valeur de l'ordre de 0,1 p. 100, tandis qu'elle était de l'ordre de 1 p. 100 avec l'installation précédemment utilisée.

En ce qui concerne les fluctuations possibles du mouvement propre, une étude expérimentale nous a permis de vérifier périodiquement que les fluctuations étaient inférieures à 0,5 p. 100 pour 30 min de mesure.

5) LES ERREURS STATISTIQUES. — Si A est la valeur la plus probable obtenue sur une série de mesures :

a , la valeur obtenue lors d'une mesure,

b_1 , la valeur obtenue lors d'une mesure sur un facteur de correction (par exemple le mouvement propre),

b_2 , la valeur la plus probable de b_1 .

Si la valeur réelle A' (d'un nombre de coups par exemple) est obtenue en déduisant de A les valeurs des corrections dues au mouvement propre, etc., alors la valeur mesurée et corrigée a' et la valeur la plus probable A' corrigée, sont obtenues des deux relations :

$$13.III \quad \begin{cases} a' = a \pm b_1 \\ A' = A \pm b_2 \end{cases}$$

d'où l'erreur quadratique moyenne sur A' :

$$14.III \quad \begin{cases} \Delta A' = \Delta A + \Delta b_2 \\ \Delta A = \sqrt{A} \quad \text{et} \quad \Delta b_2 = \sqrt{b_2} \end{cases}$$

où :

$$\Delta A' = \sqrt{(\sqrt{A})^2 + (\sqrt{b_2})^2}.$$

Quand la valeur absolue du nombre de désintégrations est obtenu de la relation :

$$\mathcal{N} = \frac{N_1 \times N_2}{N_c} \quad (\text{méthode des coïncidences})$$

L'erreur statistique maximum sur $\mathcal{N}$ est exprimée par :

$$15. III \quad \frac{\Delta N_c}{N_c} + \frac{\Delta N_1}{N_1} + \frac{\Delta N_2}{N_2} = \frac{\Delta \mathcal{N}}{\mathcal{N}}.$$

Cette erreur est d'autant plus faible que les taux de numération sont plus élevés. Nous avons constaté expérimentalement que dans le cas de mesure de 30 000 coups/min elle est inférieure à 1 p. 100.

6) L'EFFICACITÉ DU COMPTEUR β ENVERS LES RAYONS γ est une des causes d'erreur les plus importantes. Cette efficacité a été mesurée en faisant dévier les rayons β dans un champ magnétique ou en les absorbant à travers des écrans d'Al. La valeur mesurée a été retranchée du nombre de rayons β comptés ; les coïncidences comptées au cours de cette mesure ont été également déduites des coïncidences $\beta - \gamma$.

L'erreur relative sur le nombre réel de particules β et de coïncidences, est évaluée par la méthode des moindres carrés. Cette erreur est de 0,05 p. 100 pour un taux de numération β de 2 000 coups/min et de 1,5 p. 100 pour un taux de coïncidences de 30 coups/min. Elle est d'environ seulement 0,01 et 0,5 p. 100 pour une mesure où le taux de comptage β est de 9 000 coups/min et celui des coïncidences de 100 coups/min environ.

E) Résultats des étalonnages absolus.

— 1) COMPARAISON ENTRE NOS RÉSULTATS ET CEUX D'AUTRES AUTEURS.

— Selon les résultats communiqués par le dernier Congrès des Etalons Radioactifs, la précision de mesure obtenue par la méthode des coïncidences était d'environ 10 p. 100 pour une intensité de l'ordre du microcurie. La raison première de ce peu de précision tient à la faible efficacité du compteur G. M. utilisé pour les rayons γ , ce qui entraîne un faible rendement en coïncidences, ainsi que l'utilisation d'un temps de résolution assez long rendant impossible l'étalonnage des préparations d'une intensité supérieure à quelques microcuries.

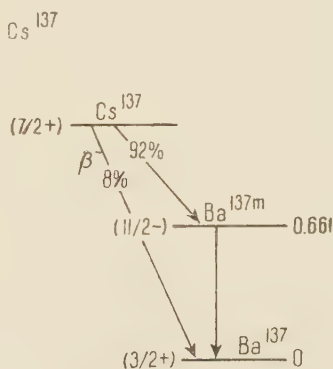


Fig. 13. — Schéma de désintégration du ^{137}Cs .

Nous avons réalisé une installation à coïncidences rapides $\beta - \gamma$ et $\gamma - \gamma$, avec laquelle nous avons obtenu une précision d'environ 5 p. 100 pour des échantillons d'une intensité supérieure à 50 μC .

Cette précision est due surtout à la réduction des coïncidences fortuites, lesquelles sont toujours cause d'erreurs. Cette méthode nous a permis, en considérant les coïncidences entre deux γ , de réduire complètement l'erreur provenant de l'efficacité que présente le compteur G. M. pour les photons. La mesure avec précision des échantillons radioactifs intenses étant directement liée à la réduction du temps de résolution (voir chap. II), nous nous proposons de poursuivre ces expériences et faire une installation à coïncidences qui utilise un temps de résolution de l'ordre de 10^{-8} à 10^{-9} sec.

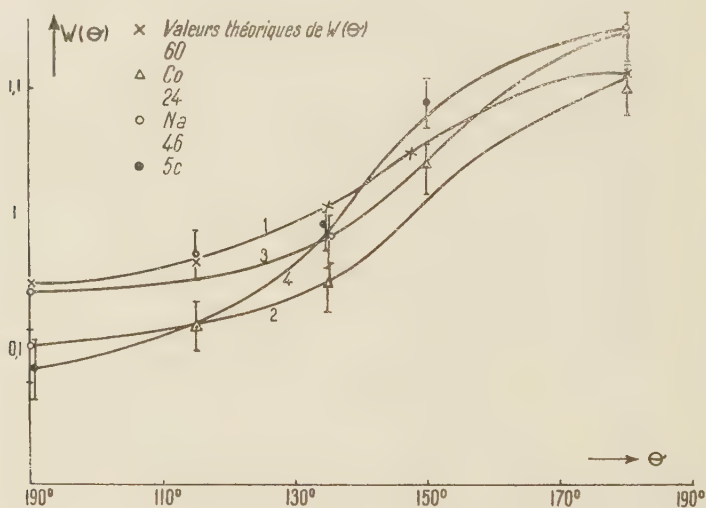


Fig. 14. — Variations isotropiques.

- La courbe 1 représente les valeurs théoriques de la fonction de corrélation angulaire normalisée.
- La courbe 2 représente les valeurs expérimentales de $W(\theta)$ du ^{60}Co .
- La courbe 3 représente les valeurs expérimentales de $W(\theta)$ du ^{24}Na .
- La courbe 4 représente les valeurs expérimentales de $W(\theta)$ du ^{46}Sc .

2) LES RÉSULTATS OBTENUS PAR DIFFÉRENTES MÉTHODES ET LEURS COMPARAISONS. — Des résultats sur les étalonnages du ^{60}Co , ^{46}Sc et ^{24}Na par la mesure de coïncidences $\gamma - \gamma$ pour $\theta = 90^\circ$, 130° , 150° et 180° (tableau IV), il résulte que la différence obtenue entre ces diverses mesures correspond à la variation de la fonction de la corrélation angulaire $W(\theta)$ trouvée expérimentalement par plusieurs auteurs (2),

(3), (12), (17), (18) et celle prévue par la théorie dans de bonnes limites d'erreurs. En comparant les mesures en coïncidences $\beta - \gamma$ et celles en $\gamma - \gamma$ (tableau IX), on constate que les résultats pour le ^{24}Na correspondent à 0,63 p. 100 près.

Le tableau IX résume les résultats concernant les étalonnages par la méthode des coïncidences $\beta - \gamma$ et $\gamma - \gamma$ des divers échantillons et la précision obtenue dans chaque cas.

Pour comparer nos résultats à ceux obtenus dans d'autres laboratoires, nous avons fait appel aux services du Laboratoire des Mesures du C. E. A. (France) et à ceux de A. E. R. E. à Harwell (Grande-Bretagne). En comparant les résultats obtenus par la mesure des coïncidences à ceux obtenus avec le compteur à angle 4π ou le compteur à liquide, on constate que dans le cas du ^{60}Co , du ^{46}Sc et du ^{24}Na , l'accord est excellent, de 1 à 3 p. 100. Dans le cas de l' ^{198}Au , dont le schéma de désintégration est plus complexe, l'écart est seulement de 1 p. 100 avec le laboratoire anglais et de 4 p. 100 avec le Laboratoire de Mesures du C. E. A.

Les étalonnages en coïncidences ont été vérifiés par des mesures avec la chambre d'ionisation dont la précision est de 6 p. 100, toutefois l'accord entre les résultats des deux méthodes est de 5 p. 100 environ.

CHAPITRE IV

Détermination du milligramme Ra équivalent de plusieurs radioéléments émetteurs γ .

A) *Parmi le grand nombre de radioéléments artificiels connus*, certains sont utilisés si fréquemment qu'il est nécessaire dans les Laboratoires de radioactivité d'avoir à sa disposition des étalons de ces radioéléments. Mais, outre la difficulté des mesures absolues, la période radioactive de beaucoup de ces radioéléments est trop courte pour que l'on puisse conserver pratiquement des étalons. Dans le cas des radioéléments émetteurs de rayonnements γ , il est préférable, toutes les fois que cela est possible, de déterminer une équivalence avec le radium : on compare les courants produits dans une chambre d'ionisation de référence par un étalon de radium et une source étalonnée du radioélément. Ce travail fait une fois pour toutes pour un appareil déterminé, la mesure absolue toujours délicate est alors remplacée par une simple comparaison avec un étalon de radium.

Nous avons déterminé le « milligramme Ra équivalent »⁽¹⁾ de plusieurs

(1) Le milligramme Ra équivalent est défini plus loin.

radioéléments émetteurs γ dans le cas de deux chambres d'ionisation : d'une part la chambre Curie d'ionisation grand condensateur, utilisée au Service des Mesures de l'Institut du Radium (27, 28, 29), d'autre part une chambre d'ionisation étanche, également du type condensateur. Dans les deux cas, les rayonnements sont filtrés par 1 cm de plomb. Ces mesures nous ont permis en outre de calculer le rendement des chambres en fonction de l'énergie des rayonnements γ émis par les radioéléments étudiés. La connaissance de la courbe rendement-énergie constitue un étalonnage de la chambre d'ionisation ; une simple mesure permet alors de connaître l'activité de tout radioélément émetteur γ dont on connaît le schéma de désintégration et l'énergie des rayonnements émis.

B) *Description des deux chambres Curie.* — 1) LE GRAND CONDENSATEUR DU LABORATOIRE CURIE (27) permet la comparaison avec une bonne précision, de deux préparations radioactives au moyen de leurs rayonnements γ (les rayonnements sont filtrés par 1 cm de plomb). L'influence d'une différence dans la forme géométrique des sources est pratiquement négligeable dans le cas de sources plates ; par contre, il est parfois nécessaire de faire une correction dans le cas de déplacements dans le sens vertical (de l'ordre de 1 p. 100 pour 3 mm). Cette chambre d'ionisation n'est pas étanche, le courant d'ionisation est sensible à une variation de la pression atmosphérique, mais cela ne présente pas beaucoup d'inconvénients car les mesures sont faites par comparaison avec un étalon de radium.

2) UNE CHAMBRE-CONDENSATEUR ÉTANCHE a été construite par W. Sébaoun (28) pour la comparaison précise de préparations de

TABLEAU V

	Grand condensateur à air	Grand condensateur étanche (1)
Volume des chambres.	11,7 litres	18,9 litres
Gaz de remplissage	Air 1 kg cm ² non étanche	Argon 1 kg cm ² étanche
Mouvement propre	2,4 mm	3,7.10 ⁻⁴ UES
Sensibilité	0,034 UES mg Ra	0,005 UES mg Ra
Dispositif électrométrique.	Électromètre à quadrants	Lampe électromètre
Sensibilité à la tension	500 mm volt	2 000 mm volt
Méthode de mesure	Quartz piézoélectrique de P. Curie	Méthode de compensation de Townsend

radium plus faibles. Cette chambre, de forme géométrique voisine de celle du grand condensateur rempli d'argon, est plus sensible (fig. 15).

On a comparé ci-dessous les principales caractéristiques des deux chambres et leur dispositif électrométrique.

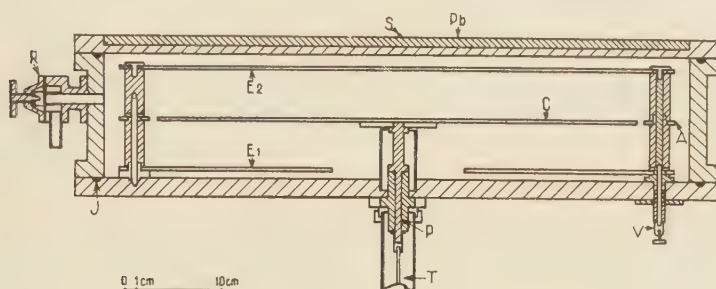


Fig. 15. — Grand condensateur étanche à l'argon.

C) **Milligramme Ra équivalent.** — Après avoir réalisé et étalonné une série de sources radioactives de nature et d'intensité diverses, nous avons comparé le courant d'ionisation obtenu avec ces différentes préparations de courtes périodes à celui obtenu avec un étalon de radium, pour repérer la valeur des étalons. L'intensité de ces sources a pu être exprimée en milligrammes Ra équivalent.

Appelons A le nombre de désintégrations par seconde en 4π d'une

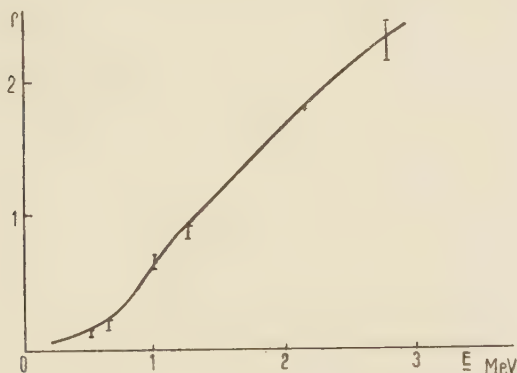


Fig. 16. — Courbe des efficacités de la chambre-condensateur à l'argon.

source de Co étalonnée par la méthode des coïncidences, par exemple.

Après avoir placé la source sur la chambre à une place repérée, on mesure le courant i_1 . A une place repérée, la même par exemple, on

place un étalon de X mg Ra. Nous mesurons un courant i'_2 . Si l'étalon est de 1 mg Ra, le courant mesuré est $i_2 = \frac{i'_2}{X}$.

A l'activité A de la source de Co, qui donne un courant i_1 dans la chambre utilisée, correspond un étalon de 1 mg Ra $= \frac{i_1}{i_2}$ mg Ra.

Si M est l'activité de la source de Co, telle qu'elle produise le même courant dans la chambre utilisée que 1 mg Ra, alors :

$$1. IV \quad M = \frac{A}{i}.$$

M est le milligramme Ra équivalent.

Le milligramme Ra équivalent d'un radioélément pour une chambre d'ionisation donnée est la quantité de ce radioélément exprimée en millicuries, qui produit dans cette chambre le même courant d'ionisation que 1 mg de radium élément.

Les déterminations expérimentales de M pour chaque radioélément ont été faites avec la chambre à argon.

Le tableau ci-dessous donne les résultats obtenus :

TABLEAU VI

Radioélément	Grand condensateur à air	Chambre condensateur étanche
^{60}Co	$0,57 \pm 0,02$	$0,57 \pm 0,02$
^{137}Cs	$6,4 \pm 0,4$	$6,1 \pm 0,4$
^{24}Na	$0,30 \pm 0,02$	$0,30 \pm 0,02$
^{46}Sc	$0,77 \pm 0,04$	$0,76 \pm 0,04$
^{64}Cu	$3,6 \pm 0,3$	$3,8 \pm 0,2$

Les résultats sont en accord pour les deux chambres d'ionisation dans la limite des erreurs expérimentales.

D) **Rendement des chambres d'ionisation.** — Soit un radioélément émetteur de rayons γ monoénergétiques d'énergie E . On peut définir le rendement ρ de la chambre d'ionisation pour l'énergie E comme le rapport du courant d'ionisation produit au nombre N de rayons γ émis par seconde dans 4π .

$$2. IV \quad \rho = \frac{i}{N}.$$

Si le radioélément émet plusieurs rayonnements γ d'énergie E_1 ,

$E_2, \dots, E$ et $N_1, N_2, \dots, N$ étant le nombre de ces rayons γ émis par seconde, on a :

$$3.IV \quad i = \sum_p \rho_p N_p.$$

Considérons d'abord des échantillons de différents radioéléments d'activité A, B, C, ..., exprimée en millicuries et qui n'émettent qu'un photon par désintégration dans 4π .

D'après ce qui précède :

$$M_A = \frac{B}{I_A}, \quad M_B = \frac{B}{I_B}, \quad \dots$$

Soit ρ_A, ρ_B, ρ_C les efficacités de la chambre pour les photons d'énergie $E_A, E_B, E_C \dots$ des sources A, B, C, ... alors :

$$4.IV \quad i_A = \rho_A \cdot A, \quad i_B = \rho_B \cdot B, \quad i_C = \rho_C \cdot C.$$

Les mesures des courants i_A, i_B , etc., jointes à celles de l'activité des sources A, B, C, faites au préalable, nous donnent immédiatement :

$$\rho_A, \rho_B, \rho_C, \dots$$

Dans le cas où il n'y a qu'un photon d'énergie connue par désintégration, on peut donc déterminer les efficacités de la chambre condensateur utilisée et construire la courbe $\rho = f(E)$ (fig. 16).

Nous avons utilisé des échantillons de :

^{24}Na , ^{60}Co , ^{46}Sc , ^{137}Cs et ^{64}Cu , en admettant l'émission monochromatique respectivement de 2,76, 1,25, 1, 0,667 et 0,511 MeV.

L'interpolation entre les points 1,25 et 2,76 MeV est assez aléatoire, nous avons ajusté la courbe de la meilleure façon pour obtenir une valeur correcte dans le cas de Ra, dont l'énergie et les proportions par désintégration sont connues.

On indique dans le tableau VII les rendements calculés pour les deux chambres d'ionisation.

TABLEAU VII

Proportion en p. 100.

	Énergie des γ	Grand condensateur	Chambre-condensateur étanche
200	^{64}Cu 0,511	$0,13 \pm 0,01$	$0,12 \pm 0,01$
92	^{137}Cs 0,667	$0,17 \pm 0,01$	$0,18 \pm 0,01$
200	^{46}Sc 1	$0,65 \pm 0,04$	$0,66 \pm 0,04$
200	^{60}Co 1,25	$0,88 \pm 0,03$	$0,88 \pm 0,03$
100	^{24}Na 2,76	$2,30 \pm 0,15$	$2,30 \pm 0,15$

Considérons maintenant une source émettant un spectre γ complexe, plusieurs rayonnements γ d'énergie $E_1, E_2, \dots, E_p$, émis chacun par seconde en $1/\pi$ en nombre $N_1, N_2, \dots, N_p$. L'intensité du courant de la chambre est alors :

$$5. IV \quad i = \rho_1 N_1 + \rho_2 N_2 + \dots + \rho_p N_p = \sum_p \rho_p N_p.$$

Pour un corps qui émet un spectre γ complexe, on peut considérer l'efficacité globale du rayonnement complexe :

$$6. IV \quad i = \Sigma \rho_p N_p = \rho A.$$

La courbe figure 16 nous permet de trouver $\rho_1, \rho_2, \dots, \rho_p$ et par conséquent d'en déduire i d'après avoir calculé $\sum_p \rho_p N_p$ et de comparer cette valeur avec la valeur mesurée.

Un contrôle a été effectué en calculant d'après la courbe 16 le courant d'ionisation qu'on doit obtenir avec une source de Ra de 1 mg. Pour cela on a tenu compte des proportions relatives des rayons γ de différentes énergies dans le rayonnement du radium.

Le spectre γ émis est donné dans le tableau VIII (énergie et proportions).

TABLEAU VIII

E en MeV	r en p. 100	ρ	ρr
0,240	0,12	0,05	0,0060
0,204	0,26	0,06	0,0156
0,350	0,45	0,07	0,0315
0,607	0,66	0,16	0,1055
0,766	0,065	0,31	0,0202
0,933	0,065	0,55	0,0358
1,120	0,21	0,77	0,1616
1,238	0,065	0,59	0,580
1,379	0,065	1,03	0,0670
1,756	0,26	1,44	0,3742
2,193	0,074	1,87	0,1385

On en déduit : $\Sigma r \rho = 1,0139$
et :

$$M_{Ra} = \frac{1}{\Sigma r \rho} = 0,986.$$

L'accord est réalisé à 1 p. 100 près.

Les valeurs obtenues pour le milligramme Ra équivalent avec les deux chambres sont approximativement les mêmes, malgré les différences dans leur construction.

Les précisions sont de l'ordre de quelques pour-cent, l'erreur la plus grande provenant des mesures de l'activité des sources.

CHAPITRE V

CONCLUSION

De tout ce qui précède nous pouvons tirer la conclusion suivante :

En ce qui concerne la technique, nous avons réussi à mettre au point une installation à coïncidences qui fonctionne avec des taux de numération élevés et permet un bon rendement des coïncidences. La précision de mesure est ainsi nettement améliorée, nous avons pu étalonner des échantillons d'une activité supérieure à 50 μ c.

Les étalonnages absolus ont porté sur les radioéléments suivants :

^{64}Cu , ^{24}Na , ^{46}Sc , ^{198}Au , ^{22}Na , ^{60}Co et ^{137}Cs .

Les corrélations angulaires entre rayonnements ont fait l'objet d'une étude particulière, dont les résultats se sont avérés en bon accord avec les prévisions théoriques et les résultats d'autres auteurs.

Les résultats des étalonnages absolus ont été vérifiés par plusieurs méthodes de contrôle, utilisant le compteur 4π , le compteur à liquide et les chambres d'ionisation. Ainsi on a pu constater que les résultats obtenus par la méthode des coïncidences étaient en très bon accord, meilleur que 5 p. 100, avec les méthodes les plus sensibles.

Des sources d'une intensité supérieure à 100 μ c ont été mesurées avec une chambre d'ionisation qui donne une précision d'environ 6 p. 100.

En utilisant deux chambres du type grand condensateur, l'une à air, l'autre à argon, nous avons déterminé la valeur du milligramme Ra équivalent de plusieurs radioéléments.

Nous avons tracé la courbe des efficacités de la chambre-condensateur à argon, qui ainsi étalonnée servira par la suite à des mesures directes de fortes intensités.

Les valeurs obtenues pour les deux chambres considérées sont à peu près les mêmes. La précision est de l'ordre de quelques pour-cent.

Tout ceci nous permet de conclure que pour des schémas de désintégration assez simples et bien connus, la méthode fondée sur la mesure des coïncidences peut être utilisée efficacement, elle ne présente aucune

TABLEAU IX. — Résultats des étalonnages par la méthode des coïncidences et différentes méthodes de contrôles.
Activité trouvée par différentes méthodes (mC = millicuries).

Source mesurée	Intensité de la source mesurée en coïncidences	Méthode des coïncidences β - γ	Méthode des coïncidences γ - γ à 130° et à 90°	Méthode du compteur 4π	Méthode du compteur à liquide	Chambre d'ionisation	Coïncidences (Laboratoires étrangers)	Précision de mesures (p. 100)	Différences des résultats (p. 100)
^{60}Co	$8,95 \cdot 10^{-4}$ mC	$8,80 \cdot 10^{-4}$ mC	$8,97 \cdot 10^{-4}$ mC	—	—	—	$9,06 \cdot 10^{-4}$ mC	± 1 ± 2	2 3
I ^{24}Na	$1,48 \cdot 10^{-4}$ mC	$1,435 \cdot 10^{-2}$ mC/g	$1,445 \cdot 10^{-2}$ mC/g	—	$1,460 \cdot 10^{-2}$ mC/g (C.E.A.)	$1,560 \cdot 10^{-2}$ mC/g	—	$\pm 1,6 \pm 1,5 \pm 5$	0,7 1,4
II	$1,90 \cdot 10^{-4}$ mC	$1,87 \cdot 10^{-4}$ mC	$1,95 \cdot 10^{-4}$ mC	$1,81 \cdot 10^{-4}$ mC (C.E.A.)	—	—	—	$\pm 2,8 \pm 2 \pm 2$	5 5
^{46}Sc	$2,25 \cdot 10^{-4}$ mC le 5-10-1955	$3,45 \cdot 10^{-3}$ mC/cm ³	$3,470$ mC/cm ³	—	—	$3,74$ mC/cm ³	—	$\pm 1,7 \pm 1,5 \pm 6$	0,6 6
I ^{198}Au	—	$1,2 \cdot 10^{-3}$ mC/mg	—	$1,15 \cdot 10^{-3}$ mC/mg	—	$1,09 \cdot 10^{-3}$ mC/mg	$1,2 \cdot 10^{-3}$ mC/mg (C.E.A.)	$\pm 4 \pm 2 \pm 5$	4 9
II	$6,68 \cdot 10^{-4}$ mC	$3,23 \cdot 10^{-3}$ mC/mg	—	$3,20 \cdot 10^{-3}$ mC/mg (Harwell)	—	$2,97 \cdot 10^{-3}$ mC/mg	—	$\pm 4 \pm 3,6 \pm 8$	0,9 6,6

	1	2	3	4
	3, 5, 10 ⁻⁴ mC en fév. 1955	0, 40. 10 ⁻³ mC	—	0, 37. 10 ⁻³ mC
II ²² Na	1, 45. 10 ⁻⁴ mC	—	1, 48. 10 ⁻⁵ (Harwell)	—
		1, 46. 10 ⁻⁵ mC/mg	—	1, 38. 10 ⁻⁵ mC/mg
III ²⁴ Na	2, 16. 10 ⁻³ mC le 30-3-1955	—	4, 21. 10 ⁻³ (Harwell)	—
		4, 18. 10 ⁻³ mC/mg	—	—
⁶⁰ Co	10, 2. 10 ⁻³ mC le 5-1-1956	10, 6. 10 ⁻³ mC	—	10, 0. 10 ⁻³ mC
²⁴ Na	19, 6. 10 ⁻³ mC	340. 10 ⁻³ mC	—	347. 10 ⁻³ mC
⁴⁶ Sc	15, 8. 10 ⁻³ mC	16, 04. 10 ⁻³ mC	—	15, 7. 10 ⁻³ mC
²² Na	35, 2. 10 ⁻³ mC	—	4, 64. 10 ⁻³ (Harwell)	—
		4, 51. 10 ⁻³ mC/mg	—	—
⁶⁴ Cu	21, 0. 10 ⁻³ mC	—	—	134, 1. 10 ⁻³ mC
¹³⁷ Cs	—	—	—	—
		—	—	0, 2472 0, 1162
		—	—	—

difficulté concernant l'appareillage qui, une fois mis au point, peut servir à des mesures en série ; elle ne demande pas de préparation compliquée de l'échantillon et est, en outre, une méthode qui, utilisant des compteurs à grande efficacité, rend possible la mesure absolue d'échantillons de fortes intensités.

BIBLIOGRAPHIE

- (1) J. S. ALLEN et T. C. ENGELS. — *Rev. Sci. Instr.*, 1951, **23**, 401.
- (2) J. BARNONTHY et M. FORRO. — *Rev. Sci. Instr.*, 1951, **22**, 415.
- (3) J. R. BEISTER et N. R. WIEDENBECK. — *Phys. Rev.*, 1952, **79**.
- (4) P. R. BELL. — *Phys. Rev.*, 1948, **73**, 1405.
- (5) J. M. BERGER et J. DOGGET. — *Nuclear Abstract*, 1955.
- (6) L. C. BIEDENHARN et M. E. ROSE. — *Rev. Mod. Physics*, 1953, **25**, 729.
- (7) S. D. BLOOM. — *Phys. Rev.*, 1952, **88**, 312.
- (8) C. J. BORKOWSKI. — *Nucl. Sci.*, Series Nat. Research Council, octobre 1950.
- (9) W. BOTHE et H. GEIGER. — *Zeit. f. Phys.*, 1925, **32**, 639.
- (10) W. BOTHE et W. KOLHORSTER. — *Naturwiss.*, 1928, **16**, 1045.
- (11) W. BOTHE. — *Zeit. f. Phys.*, 1929, **59**, 1.
- (12) W. BOTHE et VON BAEYER. — *Zeit. f. Phys.*, 1935, **25**, 417.
- (13) W. BOTHE et MAIER-LEIBNITZ. — *Zeit. f. Phys.*, 1936, **102**, 143.
- (14) W. BOTHE et MAIER-LEIBNITZ. — *Zeit. f. Phys.*, 1936, **104**, 604.
- (15) W. BOTHE et MAIER-LEIBNITZ. — *Zeit. f. Phys.*, 1937, **107**, 513.
- (16) R. BOUCHEZ. — *Thèse Paris*, 1950.
- (17) E. L. BRADY et M. DEUTSCH. — *Phys. Rev.*, 1948, **74**, 1541.
- (18) E. L. BRADY et M. DEUTSCH. — *Phys. Rev.*, 1950, **78**, 558.
- (19) A. R. BROSSI, B. H. KETELLA et FAIRSTEEN. — *Phys. Rev.*, 1951, **84**, 586.
- (20) G. J. BRUCKER. — *Nucleonics*, 1952, **41**, 72.
- (21) R. K. CLARK. — N. Y. O., 1506, U. S. Dept of Commerce, W-tm, D. C., March 1950.
- (22) R. COHEN. — *Ann. de Phys.*, mars-avril 1952 [12], **7**, 185.
- (23) R. COHEN. — *J. Physique Rad.*, 1948, **9**, 256.
- (24) COOK, E. H. YARBOROUGH et C. D. FLORIDA. — *J. Sci. Instr.*, 1949, **26**, 124.
- (25) B. COOLINGE. — *Proc. Phys. Soc.*, 1950, **63**, 15.
- (26) M^{lle} M. CRUT. — Diplôme d'études supérieures, Paris, 1953.
- (27) M^{me} P. CURIE. — *J. Physique Rad.*, 1912, **2**, 795.
- (28) M^{me} P. CURIE. — *J. Physique Rad.*, 1933, **4**, 459.
- (29) M^{me} I. CURIE. — *J. Physique Rad.*, 1954, **15**, 790.
- (30) M^{me} P. CURIE. — *Traité de Radioactivité*, Paris, 1935.
- (31) Ch. M. DAVISSON et R. D. EVANS. — *Rev. Mod. Phys.*, 1952, **24**, 79.
- (32) H. DENHARTOG et F. A. MÜLLER. — *Physica*, 1950, **16**, 26.
- (33) J. V. DUNWORTH. — *Nature*, 1939, **143**, 1065.
- (34) J. V. DUNWORTH. — *Nature*, 1939, **144**, 152.
- (35) J. V. DUNWORTH. — *Rev. Sci. Instr.*, 1940, **11**, 167.
- (36) T. S. EBY et W. K. JENTSCHKE. — *Phys. Rev.*, 1954, **96**, 911.
- (37) H. ELLIOTT. — *Proc. Phys. Soc.*, 1949, **62**, 369.

- (38) H. ELLIOTT et L. G. PRESTON. — *Canad. J. of Phys.*, 1954, **32**, 153.
- (39) D. L. FALKOFF et G. E. UHLENBECK. — *Phys. Rev.*, 1950, **79**, 334.
- (40) N. FEATHER et J. V. DUNWORTH. — *Proc. Camb. Phil. Soc.*, 1938, **34**, 435.
- (41) H. FRAUNFELDER. — *Am. Rev. Nucl. Sc.*, 1953, **2**, 129.
- (42) M. FURST, H. KALLMANN et B. KRAMER. — *Phys. Rev.*, 1953, **89**, 416.
- (43) O. G. GLASSER et BESSELEY. — *Phys. Rev.*, 1935, **47**, 570.
- (44) G. I. GLEASON, J. D. TAYLOR et D. L. TABERN. — *Nucleonics*, 1951, **8**, n° 5, 12.
- (45) L. H. GRAY. — *British Journ. of Radiol.*, 1949, **22**, 677.
- (46) D. R. HAMILTON. — *Phys. Rev.*, 1940, **11**, 167.
- (47) R. HOFSTADTER. — *Nucleonics*, 1949, **4**, n° 4, 2.
- (48) R. HOFSTADTER. — *Nucleonics*, 1949, **4**, n° 5, 29.
- (49) R. HOFSTADTER. — *Phys. Rev.*, 1949, **75**, 796.
- (50) R. HOFSTADTER et MCINTYRE. — *J. Amer. Phys.*, 1950, **78**, 617.
- (51) R. HOFSTADTER. — *Nucleonics*, 1950, **70**, n° 5.
- (52) HOLLANDER, PERLMAN et SEABORG. — *Rev. Mod. Phys.*, 1950, **24**, 179.
- (53) HOLLANDER, PERLMAN et SEABORG. — *Rev. mod. Phys.*, 1950, **25**, 179.
- (54) HOLLANDER, PERLMAN et SEABORG. — *Phys. Rev.*, 1951, **83**, 1059.
- (55) HOLLANDER, PERLMAN et SEABORG. — *Phys. Rev.*, 1953, **91**.
- (56) F. G. HOUTERMANS, L. SCHUTZMEISTER-MEYER et D. H. VINCENT. — *Zeit. f. Phys.*, 1952, **134**, 1-20.
- (57) W. H. JORDAN et P. R. BELL. — *Nucleonics*, 1941, **5**, n° 4.
- (58) H. KALLMANN et M. FURST. — *Phys. Rev.*, 1953, **91**, 766.
- (59) H. KALLMANN et M. FURST. — *Phys. Rev.*, 1951, **82**, 964.
- (60) H. KALLMANN et M. FURST. — *Phys. Rev.*, 1951, **83**, 674.
- (61) H. KALLMANN. — *Scintill. Symposium*, Oakridge, June 1949.
- (62) J. L. LASLETT. — *Phys. Rev.*, 1949, **76**, 858.
- (63) S. P. LLOYD. — *Phys. Rev.*, 1951, **81**, 307.
- (64) S. P. LLOYD. — *Phys. Rev.*, 1952, **83**, 716.
- (65) H. MAIER-LEIBNITZ. — *Phys. Zeit.*, 1936, **18**, 333.
- (66) H. MAIER-LEIBNITZ. — *Zeit. Naturf.*, 1946, **1**, 243.
- (67) P. MARIN, G. R. BISHOP et H. HALLAN. — *Proc. Phys. Soc.*, 1955, **A 66-608**, 1113.
- (68) A. C. MITCHELL, L. M. LANGER et P. W. MCDANIEL. — *Phys. Rev.*, 1940, **57**, 1107.
- (69) G. MORTON. — *R. C. A. Rev.*, 1940, **10**, n° 4.
- (70) F. NORLING. — *Ark. Nat. Astr. Fys.*, 1941, **27** A, n° 27.
- (71) F. NORLING. — *Zeit. f. Phys.*, 1936, **101**, 478.
- (72) W. E. PERRY. — *NPL. Report*, July 1953.
- (73) E. PICARD et A. ROGOZINSKI. — *J. Phys. Rad.*, 1953, **14**, 304.
- (74) W. C. PORTER et W. E. RAMSEY. — *J. Franck Inst.*, 1952, **254**, 155.
- (75) J. L. PUTMAN. — *Journ. of Rad.*, 1950, **23**, 265.
- (76) J. L. PUTMAE. — *Unclassified Report A. E. R. E.*, July 1953.
- (77) G. RACAH. — *Phys. Rev.*, 1951, **82**, 309.
- (78) G. A. RENARD. — *Ann. de Phys.*, 1950 [12], **5**, 385.
- (79) B. ROSSI. — *Nature*, 1930, **125**, 636.
- (80) P. SAVEL. — *Cahiers de Phys.*, mars 1944.
- (81) P. SAVEL. — *Ann. de Phys.*, 1935, [2], **4**, 88.
- (82) W. SÉBAOUN. — *Ann. de Phys.*, juillet-août 1956 [13], **1**, 680.

- (83) E. SEGRÉ. — *Experim. Nuclear Phys.* (London, Chapman et Hall), 1953, vol. **1** et **2**.
- (84) H. H. SELIGER et L. CAVALLO. — *Journ. Research N. B. S.*, 1951, **41**, 41.
- (85) H. H. SELIGER et A. SCHWEBEL. — *Nucleonics*, 1954, **12**, n° 7, 54.
- (86) D. B. SMITH. — *Unclassified Report A. E. R. E.*, July 1953.
- (87) D. B. SMITH et A. M. WILDBLOOD. — *A. E. R. E. Report*, July 1953.
- (88) F. SUZOR et S. CHARPAK. — *J. Phys. Rad.*, 1952, **13**, 1.
- (89) C. J. TAYLOR, W. K. JENTSCHKE, M. E. REMBLEY, F. S. EBY et P. G. KRUGER. — *Phys. Rev.*, 1951, **84**, 1034.
- (90) G. VALLADAS. — *J. Phys. Rad.*, 1951, **12**, n° 7, 54.
- (91) M^{me} S. VUCCINO. — *J. Phys. Rad.*, 1956, **17**, 57.
- (92) M^{me} S. VUCCINO et J. TOBAILEM. — *J. Phys. Rad.*, 1956, **17**, 347.
- (93) M^{me} S. VUCCINO. — *J. Phys. Rad.*, 1955, **16**, 462.
- (94) M^{me} S. VUCCINO. — *J. Phys. Rad.*, 1952, **13**, 1.
- (95) M. C. WIEDENBECK et J. CHU. — *Phys. Rev.*, 1947, **72**, 1164.
- (96) L. YAFFE. — *Preliminary Report*, n° 8, 1950. Nat. Research Council W-ton D. C.

DEUXIÈME THÈSE

PROPOSITIONS DONNÉES PAR LA FACULTÉ

**Considérations théoriques et expérimentales
sur la diffusion élastique des particules α .**

VU ET APPROUVÉ :

Paris, le 17 juin 1957.

Le Doyen de la Faculté des Sciences,

J. PÉRÈS.

VU ET PERMIS D'IMPRIMER :

Le Recteur de l'Académie de Paris,

JEAN SARRAILH.

